



TITLE:

核整列固体[3]Heにおける超音波測定( Dissertation\_全文 )

AUTHOR(S):

野村, 竜司

---

CITATION:

野村, 竜司. 核整列固体[3]Heにおける超音波測定. 京都大学, 2000, 博士(理学)

ISSUE DATE:

2000-03-23

URL:

<https://doi.org/10.11501/3167086>

RIGHT:

主論文

# 核整列固体 $^3\text{He}$ における超音波測定

野村竜司

目次

1. はじめに

2. 理論

2. 1 固体の状態方程式 (Mie-Grüneisen 方程式)

2. 2 固体の音速変化

2. 3 音速のモル体積依存性

2. 4 モル体積の温度依存性

2. 5 核スピン系の内部エネルギー

2. 6 音速の高温展開

2. 7 音速と弾性定数

3. 実験装置、手法

3. 1 冷却装置

3. 2 サンプルセル

3. 3 サンプル作成

3. 4 超音波測定

3. 5 NMR 装置

3. 6 温度測定

3. 7 結晶成長および融解速度

4. 実験結果、解析

4. 1 音速の絶対値の方向依存性

4. 2 U2D2 相での音速の温度依存性

4. 3 相転移点での音速の飛び

4. 4 常磁性相での音速の温度依存性

5. まとめ

6. 謝辞

7. 参考文献

1. はじめに<sup>1,2</sup>

通常物質と異なり He は絶対零度まで液体が存在する。He の 1s 軌道は閉殻であってその分極率は非常に小さく、原子間のファンデルワールス力は弱い。また質量は水素原子について軽く、格子を組むことによる零点エネルギーは大きい。これらが大気圧下では絶対零度まで固化せず液相が存在する理由である。液体  $^3\text{He}$  は低温でフェルミ縮退や P 波超流動といった顕著な量子性を示し量子液体と呼ばれている。

$^3\text{He}$  は超低温で約 34 気圧加圧すると固化する。通常固体はそのポテンシャルエネルギーを最小にするような結晶構造をとる。固体ヘリウムでは上に述べたように引力は弱く、逆に近距離のハードコアの斥力が固体形成に中心的役割をなす。剛体球を狭い空間に閉じ込めたとき整列することが知られており、アルダー固体と呼ばれている。固体 He はこのアルダー固体に近いと考えられている。低压域での固体  $^3\text{He}$  の結晶構造は bcc 構造である。図 1 が  $^3\text{He}$  の相図の概略である。300mK 以下で融解圧が温度減少とともに大きくなるという特徴がある。液体はフェルミ縮退しているが、固体では核スピン  $\frac{1}{2}$  の自由度が生き残っているため、固体の方が液体よりエントロピーが大きいことによる。

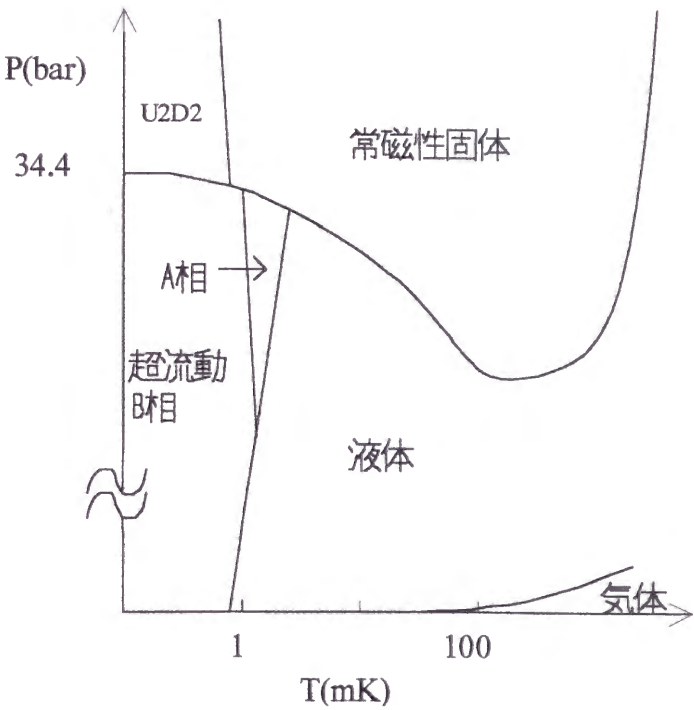


図 1  $^3\text{He}$  の相図の模式図

固体中での  $^3\text{He}$  原子の零点振動の振幅は格子間距離の 30%にも及ぶ。原子はその位置をトンネル効果で交換し合っていて量子固体と呼ばれている。この原子の直接交換は核スピン演算子の交換相互作用として表される。近距離でのハードコア的斥力のため、この交換相互作用には通常の 2 体交換だけでなく、3 体、4 体、…、等の多数の原子がその位置を循環的に入れ替える多体交換相互作用も大きく寄与している。フェルミ粒子の対称性から偶数個の粒子の交換相互作用は反強磁性的、奇数個は強磁性的であって互いに競合する。この多体交換相互作用のもと  $^3\text{He}$  は融解圧下で  $T_N=0.93\text{mK}$  という高温で核スピンの整列する。固体  $^3\text{He}$  には高磁場相、低磁場相の 2 相があり、それぞれ Canted-Normal-Antiferro 相、U2D2 相<sup>3</sup>と呼ばれる。図 2 に U2D2 相のスピンの構造を示す。U2D2 相は強磁性的に核スピンの整列した面が 2 枚ずつ up-up-down-down と(100)方向に繰り返す、一軸異方性反強磁性構造である。また常磁性相から U2D2 相への転移は一次である。

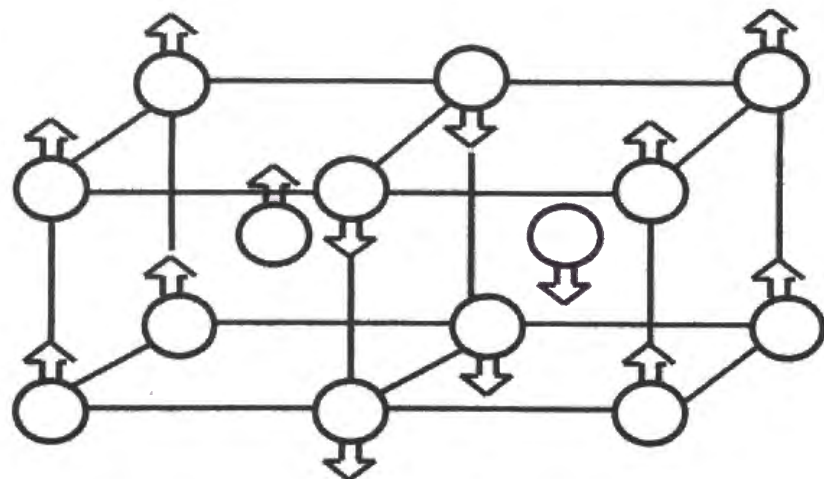


図 2 U2D2 相のスピンの構造

ここで過去になされた固体  $^3\text{He}$  および  $^4\text{He}$  の超音波の実験を簡単に振り返っておこう。初期の実験は量子固体あるいは（原子がポテンシャルエネルギーの底に局在している通常の固体とは異なる）非調和固体における弾性を調べる目的で超音波が用いられた<sup>4,5</sup>。また温度依存性が測られ、熱力学から期待される音速の温度変化を示すか調べられた<sup>6</sup>。その際見つかった異常から超音波は固体  $\text{He}$  中の格子欠陥（転位や空孔子）を調べる手段として用いられることが分かった。転位の密度、減衰係数や平均長、またそのダイナミクスが調べられた<sup>7,8,9</sup>。空孔子についても生成エネルギーやその集団モードとのカップリングなどが調べられた<sup>10,11,12</sup>。詳しくは拙修士論文の付録を参照されたい。

固体  $^3\text{He}$  の核スピン系の交換相互作用は  $J \propto V_{\text{mol}}^{18}$ （すなわちグルナイゼン定数が

$$\gamma = -\frac{d \ln J}{d \ln V_{\text{mol}}} \approx -18$$

）という大きなモル体積依存性を示す。このことは格子系と核スピン系の結合が強いことを意味し、超音波による  $^3\text{He}$  の核磁性の研究は有効的だと考えられてきた。U2D2 相の光学マグノンや音響マグノンによる音波の共鳴吸収、多重マグノン緩和による超音波の減衰など興味深い予測がある<sup>13</sup>。また U2D2 相では転位などの線欠陥が磁気的には面欠陥になり得る。この面欠陥は熱マグノンの平均自由行程<sup>14</sup>や NMR の緩和<sup>15</sup>などに関与する可能性があり、転位を調べる手段としての超音波は期待されてきた。 $T_N$  においてはモル体積が飛ぶことが知られているが、一軸異方性をもつ U2D2 相への転移で格子は一様に歪んでいるのかという問題も良く分かっていない<sup>15,16</sup>。

超低温において  $^3\text{He}$  と金属の間には大きな熱抵抗（カピッツア抵抗）が存在する。このため固体  $^3\text{He}$  を超低温に冷却するときは接触面積を増やすために焼結した銀微粒子中で冷却するのが一般的である。しかしこのような固体では超音波の実験を行うことが出来ない。超音波実験は比較的大きな（数  $\text{mm}^3$  以上）良質の単結晶を必要とし過去の実験の最低温度は  $100\text{mK}$  程度であった。唯一 Goodkind らのグループが  $12\text{mK}$  まで冷却し、核スピン系の寄与を観測している<sup>17</sup>。良質の試料を冷却する困難さから、これまで U2D2 相での超音波実験は試みられたことがなかった。

今回我々は超流動  $^3\text{He}$  と核整列固体のあいだのカピッツア抵抗が小さいことを利用して、融解圧下における U2D2 相固体  $^3\text{He}$  の単結晶単磁区サンプルで  $10.98\text{MHz}$  の縦波の音速を測定することに始めて成功した。U2D2 相における核スピンマグノンによる音速変化、一次相転移点での音速の飛び、および常磁性固体における核スピンの交換相互作用による音速変化を観測出来た<sup>18,19</sup>。また核整列固体の結晶成長、融解速度の測定も行った。



## 2. 理論

我々の実験は融解圧下の固体<sup>3</sup>Heの実験である。<sup>3</sup>Heでは既に述べたように低温で融解圧が大きく変化する。この融解圧変化によって固体<sup>3</sup>Heのモル体積が変化し、それに伴い音速も変化する。実験で得られた音速の温度変化を熱力学から計算される核スピン系の寄与とこのモル体積変化の寄与の和で説明する。このとき固体の音速は体積弾性率から計算できるとした。すなわち固体の異方性は無視し、スピン系は音波の周波数より十分速く緩和すると仮定した。

2. 1でMie-Grüneisen方程式と呼ばれる固体の状態方程式を導く。それをうい2. 2で音速変化が核スピン系の内部エネルギー変化に寄る項と、モル体積変化に寄る項の和で書けることを示す。2. 3で音速のモル体積依存性を、2. 4でその温度依存性を示す。2. 5でU2D2相、相転移点、常磁性相における核スピン系の内部エネルギー変化を示す。常磁性相においては音速が内部エネルギー変化に比例ずるとして実験結果をフィットできなかつたので、2. 6において自由エネルギーの高温展開から音速変化の高温展開を導いた。2. 7では弾性定数から音速を導いた。この関係を音速の絶対値の方向依存性の解析に用いた。

### 2. 1 固体の状態方程式 (Mie-Grüneisen 方程式)

自由エネルギーを $F$ 、内部エネルギーを $U$ 、 $T=0$ での内部エネルギーを $U_0(V)$ とすると、

$$U = U(0, V) + U(T, V) \equiv U_0(V) + U_1(T, V) \quad (2.1.1)$$

$$F = U_0 + F_1 \quad (2.1.2)$$

$$F_1 \equiv U_1 - TS \quad (2.1.3)$$

となる。ここで自由エネルギーがある一つのパラメーター $J$ で

$$F_1 = RTf\left(\frac{J}{T}\right) \quad (2.1.4)$$

と表せるとし

$$x \equiv \frac{J}{T} \quad (2.1.5)$$

とすると、

$$U_1 = F_1 - T\left(\frac{\partial F_1}{\partial T}\right)_V = RJ \frac{df}{dx} \quad (2.1.6)$$

であるから、

$$\frac{\partial F_1}{\partial J} = R \frac{df}{dx} = \frac{U_1}{J} \quad (2.1.7)$$

従って、グルナイゼン定数を

$$\gamma \equiv -\frac{d \ln J}{d \ln V} = -\frac{V}{J} \frac{dJ}{dV} \quad (2.1.8)$$

と定義すると、 $P = -\left(\frac{\partial F}{\partial V}\right)_T$ であるから、固体の状態方程式は

$$P = -\frac{dU_0}{dV} + \frac{\gamma U_1}{V} \quad (2.1.9)$$

或いは定積熱容量を用いて

$$\left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_V = \frac{\gamma C_V}{V} \quad (2.1.10)$$

と書ける。

## 2. 2 固体の音速変化

等方的な物質中で音速は断熱体積弾性率、 $B_S \equiv -V \left( \frac{\partial P}{\partial V} \right)_S$  を用いて

$$v^2 = \frac{B_S}{\rho} \quad (2.2.1)$$

と書ける。固体には異方性があり一般にはこの式は成り立たないが、以下これを使う。等温体積弾性率との間には、

$$B_S = \frac{C_P}{C_V} B_T \quad (2.2.2)$$

が成り立ち、

$$C_P - C_V = T \left( \frac{\partial V}{\partial T} \right)_P \left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_P = TV \left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_V \frac{1}{B_T} \quad (2.2.3)$$

の関係があるので、(2.2.2), (2.2.3)より、

$$B_S = B_T + \frac{T\gamma^2 C_V}{V} \quad (2.2.4)$$

となる。

Mie-Gruneisen の状態方程式より固体中の圧力の変化は(2.1.9)のように書けるので、

$$B_T = -V \left( \frac{\partial P}{\partial V} \right)_T = V \frac{d^2 U_0}{dV^2} + V \left( \frac{\partial^2 F_1}{\partial V^2} \right)_T \quad (2.2.5)$$

となる。(2.1.7), (2.1.8)より

$$\left( \frac{\partial F_1}{\partial V} \right)_T = -\frac{\gamma U_1}{V} \quad (2.2.6)$$

$$\left( \frac{\partial^2 F_1}{\partial V^2} \right)_T = -\frac{\gamma}{V} \left( \frac{\partial U_1}{\partial V} \right)_T + \frac{\gamma U_1}{V^2} - \frac{\gamma U_1}{V^2} \frac{d \ln \gamma}{d \ln V} \quad (2.2.7)$$

ここで

$$\left( \frac{\partial U_1}{\partial V} \right)_T = -\frac{\gamma R}{V} (f' + x f'') = \frac{\gamma T C_V}{V} - \frac{\gamma U_1}{V} \quad (2.2.8)$$

となるので、

$$B_S = B_0 + \frac{\gamma}{V} \left( 1 + \gamma - \frac{d \ln \gamma}{d \ln V} \right) U_1 \quad (2.2.9)$$

となる。但し  $B_0 = V \frac{d^2 U_0}{dV^2}$  とおいた。よって、

$$v^2 = \frac{B_0}{\rho} + \frac{\gamma}{\rho V} \left( 1 + \gamma - \frac{d \ln \gamma}{d \ln V} \right) U_1 \quad (2.2.10)$$

この式の第一項がモル体積変化による項で第二項が内部エネルギーによる項である。ここから音速の温度変化を次のようにモル体積変化による項と内部エネルギーの温度変化による項との2つに分けることができるとする。

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{\Delta v(V)}{v} + \frac{\Delta v(T)}{v} \quad (2.2.11)$$

今、内部エネルギーによる変化のみ考えると、 $(v + \Delta v)^2 - v^2 \cong 2v \Delta v$  より

$$\frac{\Delta v(T)}{v} = \frac{\gamma}{2v^2 \rho V} \left( \gamma + 1 - \frac{d \ln \gamma}{d \ln V} \right) \Delta U_1(T) \quad (2.2.12)$$

となる<sup>6,20,21</sup>。またモル体積変化による項については後節で述べる。

## 2. 3 音速のモル体積依存性<sup>6</sup>

デバイ温度  $\theta_D$  のグルナイゼン定数を、

$$\gamma_L \equiv -\frac{d \ln \theta_D}{d \ln V} \quad (2.3.1)$$

と定義すると、

$$\theta_D = \frac{\hbar v}{k_B} \left( \frac{6\pi^2 N}{V} \right)^{1/3} \quad (2.3.2)$$

であるから、音速  $v$  とモル体積  $V$  との関係は、

$$\frac{V}{v} \frac{dv}{dV} = \frac{d \ln v}{d \ln V} = -\left( \gamma_L - \frac{1}{3} \right) \quad (2.3.3)$$

従って

$$\frac{\Delta v}{v} = -\left( \gamma_L - \frac{1}{3} \right) \frac{\Delta V}{V} \quad (2.3.4)$$

が得られる。

また、弾性定数  $C_{ij}$  とモル体積  $V$  との関係は、

$$C_{ij} \propto \rho v^2 \propto V^{-1} V^{-2\left(\gamma_L - \frac{1}{3}\right)} \quad (2.3.5)$$

を仮定すれば、

$$\frac{d \ln C_{ij}}{d \ln V} = -2\gamma_L - \frac{1}{3} \quad (2.3.6)$$

となる。

## 2. 4 モル体積の温度依存性<sup>22</sup>

モル体積の温度依存性は、 $V=V(P,T)$ と書くと、 $dV = \left(\frac{\partial V}{\partial T}\right)_P dT + \left(\frac{\partial V}{\partial P}\right)_T dP$ より、

$$\frac{1}{V} \left(\frac{dV}{dT}\right)_m = \alpha - \kappa \left(\frac{dP}{dT}\right)_m \quad (2.4.1)$$

と表せる。ここで  $\left(\frac{dP}{dT}\right)_m$  は融解圧曲線の傾き、 $\alpha = \frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial T}\right)_P$  は膨張率、

$\kappa = -\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial P}\right)_T$  は圧縮率である。

$\alpha = \kappa \left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_V$ 、および Maxwell の関係より式(2.4.1)は

$$\frac{1}{V} \left(\frac{dV}{dT}\right)_m = \kappa \left[ \left(\frac{\partial S}{\partial V}\right)_T - \left(\frac{dP}{dT}\right)_m \right] \quad (2.4.2)$$

となり、固体、液体どちらのモル体積もこの式で決めることができる

### 2. 4. 1 $T < T_N$

U2D2 相での固体のエントロピーはスピン波によって記述され、 $T^3$  の温度依存性を持つ。

$$S_s = a \left(\frac{T}{T_N}\right)^3 \quad (2.4.3)$$

但し融解圧上で  $a = 0.19R \ln 2$  である。

$T_N$  は強いモル体積依存性を持ち、 $T_N \propto V^{\gamma}$  であるので、

$$\left(\frac{\partial S}{\partial V}\right)_T = -\frac{3a\gamma}{V} \left(\frac{T}{T_N}\right)^3 \quad (2.4.4)$$

また、クラジウス-クラペイロンの関係

$$\left(\frac{dP}{dT}\right)_m = \frac{\Delta \tilde{S}}{\Delta \tilde{V}} \quad \Delta \tilde{S} = S_l - S_s, \Delta \tilde{V} = V_l - V_s \quad (2.4.5)$$

において、数 mK の温度域で  $\Delta \tilde{S} \cong -S_s$  であるから、

$$\left(\frac{dV_s}{dT}\right)_m = \kappa \alpha \left(-3\gamma + \frac{V_s}{\Delta \tilde{V}}\right) \left(\frac{T}{T_N}\right)^3 \quad (2.4.6)$$

右辺で  $\kappa, V_s, \Delta \tilde{V}$  の変化は自身に比べ小さいのでこれらを一定として積分する。

$$V_s = 24.2 \text{ (cm}^3/\text{mole)}, \quad \gamma = 16, \quad \Delta \tilde{V} = 1.314 \text{ (cm}^3/\text{mole)},$$

$$\kappa = 5.3 \times 10^{-8} \text{ (Pa}^{-1}\text{)} \text{ である。すると、}$$

$$V_s(T) = V_s(0) - 4.0 \times 10^{-4} \left(\frac{T}{T_N}\right)^4 \text{ (cm}^3/\text{mole)} \quad (2.4.7)$$

となる。

### 2. 4. 2 $T = T_N$

$T_N$  でモル体積の飛びが見られ、その大きさは、

$$\Delta V_s = 2.14 \times 10^{-3} \text{ (cm}^3/\text{mole)} \quad (2.4.8)$$

である。

### 2. 4. 3 $T > T_N$

$T \geq T_N$  かつ  $T_N$  に近い温度では、クラジウス-クラペイロンの関係から

$$\left(\frac{\partial S}{\partial V}\right)_T \cong \gamma T \left(\frac{d^2 P}{dT^2}\right)_m \frac{\Delta \tilde{V}}{V_s} \quad (2.4.9)$$

が成り立つ。また融解圧は次のように多項式で与えられている<sup>23</sup>。

$$P(T) - P(T_N) = \sum_{n=4}^5 A_n T^n \quad (2.4.10)$$

圧力の単位は kPa で温度は mK である。また係数はそれぞれ

$$\begin{aligned} A_{-4} &= 0.78405848 & A_{-3} &= -4.5968629 & A_{-2} &= 9.5436359 \\ A_{-1} &= -10.041752 & A_0 &= 8.5580332 & A_1 &= -4.4431076 \\ A_2 &= 1.596239 \times 10^{-2} & A_3 &= -3.8815407 \times 10^{-5} & A_4 &= 7.1230765 \times 10^{-8} \end{aligned}$$

$$A_5 = -6.0945626 \times 10^{-11}$$

である。したがって(2.4.10)を(2.4.2)に代入して積分すると

$$\Delta V_s = \kappa \sum_{n=-4}^5 [\gamma \Delta \tilde{V}(n-1) - V_s] A_n T^n \quad (2.4.11)$$

となる。

## 2. 5 核スピン系の内部エネルギーの温度変化

### 2. 5. 1 $T < T_N$

$T < T_N$  ではマグノンによって内部エネルギーは記述される。マグノンの分散関係は長波長でフォノンと同様な  $\varepsilon_p = cp$  である。したがって低温での内部エネルギーはフォノンと同様なデバイモデルで表される。ただしマグノンのモードは2つであって、固体中のフォノンのモードが3つであるところは異なる。

$$U_1(T) = \frac{\pi^2 \hbar}{15c^3} \left( \frac{k_B T}{\hbar} \right)^4 \quad (2.5.1)$$

となる。ここで  $c$  は平均のスピン波の速度で  $7.8(\text{cm/sec})$  ある<sup>24</sup>。U2D2 相への転移は一次であるので相転移点直下からこの低温近似が成り立つと思われる。

### 2. 5. 2 $T = T_N$

$T = T_N$  では1次相転移によりエントロピーの飛び  $\Delta S$  が見られ、それに伴う内部エネルギーの変化は、

$$\Delta U = T \Delta S \quad (2.5.2)$$

である。 $\Delta S$  の値は Osheroff and Yu<sup>24</sup> の融解圧の測定から  $0.49 R \ln 2$ 、また Greywall and Busch<sup>25</sup> の比熱の測定から  $0.43 R \ln 2$  が得られている。

### 2. 5. 3 $T > T_N$

融解圧の温度変化から次のようにしてエントロピー、及び内部エネルギーの温度変化が計算できる。クラジウス-クラペイロンの関係(2.4.5)に(2.4.10)の融解圧を表す多項式を代入して  $\Delta \tilde{S}$  を求めることができる。また、液体のエントロピーは、Greywall<sup>26</sup> による比熱の測定から、

$$S_{liq} \cong rRT \quad (2.5.3)$$

ここで  $r \cong 4.55(\text{K}^{-1})$ ,  $R = 8.314(\text{J/mole/K})$  と書け、これから  $S_{sol}$  が求まる。エントロピーの変化から内部エネルギーの変化が求まり、

$$\Delta U_1(T) = \int C_V dT = \int T \frac{dS_{sol}}{dT} dT = -\Delta \tilde{V} \sum_{n=-4}^5 A_n (n-1) T^n + \frac{\gamma R T^2}{2} \quad (2.5.4)$$

となる。

## 2. 6 音速の高温展開

後節で述べるように(2.1.4)で仮定したような一つのパラメーターでは、常磁性相の音速変化を上手くフィット出来なかった。そこで良く知られている常磁性相の自由エネルギーの高温展開の表式から、音速の高温展開を導く。

自由エネルギーの高温展開は<sup>27</sup>

$$F_1 = RT \sum_{n=2}^{\infty} \frac{e_n(V)}{a_n T^n} = -RT \left\{ \ln(2) + \frac{e_2 \beta^2}{8} - \frac{e_3 \beta^3}{24} + \dots \right\} \quad (2.6.1)$$

と与えられている。 $e_2, e_3$  は異なる多体交換相互作用係数の組合わせで

$$e_2 = (24)^2 \left( J_t^2 - \frac{7}{8} K_p J_t + \frac{17}{64} K_p^2 \right) \text{ などと計算されている。}$$

$$\begin{aligned} P &= - \left( \frac{\partial F}{\partial V} \right)_T \\ &= - \frac{dU_0}{dV} + \frac{RT}{V} \sum \frac{\gamma_n e_n}{a_n T^n} \end{aligned} \quad (2.6.2)$$

ただし

$$\gamma_n = - \frac{d \ln e_n}{d \ln V} = - \frac{V}{e_n} \frac{de_n}{dV}$$

である。したがって

$$B_T = -V \left( \frac{\partial P}{\partial V} \right)_T$$



$$= V \frac{d^2 U_0}{dV^2} + \frac{RT}{V} \sum \frac{\gamma_n e_n}{a_n T^n} \left\{ 1 + \gamma_n - \frac{d \ln \gamma_n}{d \ln V} \right\} \quad (2.6.3)$$

また(2.2.2) (2.2.3)より、

$$B_S = B_T + \frac{TV}{C_V} \left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_V^2 \quad (2.6.4)$$

である。

$$\left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_V = -\frac{R}{V} \sum \frac{\gamma_n e_n}{a_n T^n} (n-1) \quad (2.6.5)$$

また

$$U_1 = F_1 + TS = F_1 - T \left( \frac{\partial F_1}{\partial T} \right) = R \sum \frac{n e_n}{a_n T^{n-1}} \quad (2.6.6)$$

より、

$$C_V = \left( \frac{\partial U_1}{\partial T} \right)_V = -R \sum \frac{n(n-1) e_n}{a_n T^n} \quad (2.6.7)$$

となる。 $n=3$ まで用いて、

$$B_T = B_0 + \frac{RT}{V} \left[ \frac{\gamma_2 e_2}{a_2 T^2} \left( 1 + \gamma_2 - \frac{d \ln \gamma_2}{d \ln V} \right) + \frac{\gamma_3 e_3}{a_3 T^3} \left( 1 + \gamma_3 - \frac{d \ln \gamma_3}{d \ln V} \right) \right] \quad (2.6.8)$$

$$\left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_V = -\frac{R}{V} \left[ \frac{\gamma_2 e_2}{a_2 T^2} + \frac{2\gamma_3 e_3}{a_3 T^3} \right] \quad (2.6.9)$$

$$C_V = -R \left[ \frac{2e_2}{a_2 T^2} + \frac{6e_3}{a_3 T^3} \right] \quad (2.6.10)$$

(2.6.8) (2.6.9) (2.6.10)を(2.6.4)に代入して整理すると、

$$B_S = B_0 + \frac{R}{V} \left[ \frac{e_2}{a_2 T} \Gamma_2 + \frac{e_3}{a_3 T^2} \Gamma_3 + \dots \right] \quad (2.6.11)$$

ただし

$$\Gamma_2 = \frac{\gamma_2^2}{2} + \gamma_2 - \gamma_2 \frac{d \ln \gamma_2}{d \ln V} \quad (2.6.12)$$

$$\Gamma_3 = \gamma_3^2 + \gamma_3 - \gamma_3 \frac{d \ln \gamma_3}{d \ln V} - 2\gamma_2 \gamma_3 + \frac{3}{2} \gamma_2^2 \quad (2.6.13)$$

とおいた。したがって音速の温度変化の高温展開は

$$\frac{\Delta v(T)}{v} = \frac{\Delta B_S}{2B_S} = \frac{R}{2v^2 \rho V} \left[ \frac{e_2}{a_2 T} \Gamma_2 + \frac{e_3}{a_3 T^2} \Gamma_3 + \dots \right] \quad (2.6.14)$$

と書ける。

$e_2, e_3$  は融解曲線上の熱力学関数をフィットして得た

$$e_2 = 11.5(mK^2), e_3 = 28.0(mK^3)$$

を使う<sup>23</sup>。

## 2. 7 音速と弾性定数<sup>28</sup>

変位場を  $\mathbf{u}(x, y, z)$  とすれば、歪みテンソルは

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right) \quad (2.7.1)$$

で定義される。定義から  $i, j$  について対称である。

また、応力  $\sigma_{ij}$  を  $j$  軸に垂直な単位面積に  $i$  方向に働く力と定義する。固体中の微小立方体が回転しない条件から

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ji} \quad (2.7.2)$$

と対称になる。

フックの法則から、

$$\sigma_{ij} = \sum_{kl} C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (2.7.3)$$

である。 $\sigma_{ij}, \varepsilon_{ij}$  がそれぞれ対称であるので、 $C_{ijkl}$  も  $i$  と  $j, k$  と  $l$  について対称で、

$$xx \rightarrow 1, yy \rightarrow 2, zz \rightarrow 3, yz = zy \rightarrow 4, zx = xz \rightarrow 5, xy = yx \rightarrow 6$$

とすると、

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} \\ \varepsilon_{xy} \end{pmatrix} \quad (2.7.4)$$

と書ける。

また、ひずみのエネルギーは、

$$U = \frac{1}{2} \sum_{ij} \sigma_{ij} \varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \sum_{ijkl} C_{ijkl} \varepsilon_{ij} \varepsilon_{kl} \quad (2.7.5)$$

と書けるので、

$$C_{ijkl} = C_{klij} \quad (2.7.6)$$

または

$$C_{ij} = C_{ji} \quad (2.7.7)$$

となる。従って、 $C_{ij}$  の異なる成分は高々21個となる。

立方結晶の場合、独立な弾性定数は下の3個である。

$$\begin{pmatrix} C_{ij} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \quad (2.7.8)$$

運動方程式

$$\rho \ddot{u}_i = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} \quad (2.7.9)$$

に、(2.7.3)を代入して、

$$\rho \ddot{u}_i = C_{ijkl} \frac{\partial \varepsilon_{kl}}{\partial x_j} = \frac{C_{ijkl}}{2} \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \frac{\partial u_l}{\partial x_k} + \frac{\partial u_k}{\partial x_l} \right) = C_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} \quad (2.7.10)$$

ここで  $C_{ijkl}$  が  $k, l$  について対称であることを用いた。運動方程式の解が

$$u_j = a_j \exp\{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)\} \quad (2.7.11)$$

の形を持つとすると、

$$\rho \omega^2 u_i = C_{ijkl} k_j k_k u_l \quad (2.7.12)$$

いま  $u_i = \delta_{il} u_l$  と書くとこの方程式は

$$(\rho \omega^2 \delta_{il} - C_{ijkl} k_j k_k) u_l = 0 \quad (2.7.13)$$

これが0でない解を持つのは  $u_l$  の係数からなる行列式が0となるときで、

$$|\rho \omega^2 \delta_{il} - C_{ijkl} k_j k_k| = 0 \quad (2.7.14)$$

立方結晶の場合、結晶軸を  $x, y, z$  軸にとり、 $\mathbf{k}$  がそれらの軸となす角を  $\theta_1, \theta_2, \theta_3$  とする。  $X \equiv \rho \omega^2 / k^2$  とおくと上の方程式は次のようになる。

$$\left( X - \frac{C_{11} + 2C_{44}}{3} \right)^3 + p \left( X - \frac{C_{11} + 2C_{44}}{3} \right) + q = 0 \quad (2.7.15)$$

ここで、

$$p = \frac{3(C_{11} + C_{12})(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})s_2 - (C_{11} - C_{44})^2}{3}$$

$$q = -\frac{2}{27}(C_{11} - C_{44})^3 + \frac{(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(C_{11} + C_{12})(C_{11} - C_{44})s_2}{3} + (C_{11} - C_{12} - 2C_{44})\{(C_{11} + C_{12})(C_{11} - C_{44}) - 2(C_{12} + C_{44})^2\}s_3$$

$$s_2 = \cos^2 \theta_1 \cos^2 \theta_2 + \cos^2 \theta_2 \cos^2 \theta_3 + \cos^2 \theta_3 \cos^2 \theta_1$$

$$s_3 = \cos^2 \theta_1 \cos^2 \theta_2 \cos^2 \theta_3$$

$$\text{この解は、} \quad (2.7.16)$$

$$X - \frac{C_{11} + 2C_{44}}{3} = \begin{cases} \alpha + \beta \\ \frac{-1+i\sqrt{3}}{2}\alpha + \frac{-1-i\sqrt{3}}{2}\beta \\ \frac{-1-i\sqrt{3}}{2}\alpha + \frac{-1+i\sqrt{3}}{2}\beta \end{cases} \quad (2.7.17)$$

である。これから立方対称固体の任意の方向への音速が弾性定数から計算できる。ここで、

$$\alpha = \sqrt[3]{-\frac{q}{2} + \sqrt{\left(\frac{q}{2}\right)^2 + \left(\frac{p}{3}\right)^3}}$$

$$\beta = \sqrt[3]{-\frac{q}{2} - \sqrt{\left(\frac{q}{2}\right)^2 + \left(\frac{p}{3}\right)^3}}$$

$$\alpha\beta = -\frac{p}{3}$$

である。

(2.7.18)

### 3. 実験装置、手法

#### 3. 1 冷却方法

U2D2 相の実験を行うには 1mK 以下の超低温を得る必要がある。このため我々は銅の核断熱消磁法を用いた。銅バンドルは 3 2 モルであって希釈冷凍機の混合段とは熱絶縁体の TI ポリマーで固定されている。また熱接触は Zn 熱スイッチを通してとっている。超伝導マグネットが発生した約 8 テスラの磁場中で銅バンドルを 15mK 程度まで予冷するのに 4, 5 日かかった。この予冷後、熱スイッチを切り離し 100 ミリテスラまで丸 1 日かけて消磁した。今回の実験での最低温度は約 0.5mK で U2D2 相中の実験は 5 日ほど継続できた。過去に行った核整列相中のパルス NMR の実験よりも最低温度が高く、温度上昇も速いのは今回のサンプルセルで使っているエポキシの量が多いためと思われる。消磁中の冷却の様子は液体  $^3\text{He}$  中の超音波でモニターした。図 3 に音速変化と減衰を断熱消磁用超伝導マグネットの磁場でプロットした。断熱消磁中の磁場と温度は比例関係にあるので、温度勾配の影響は大きい但凡その温度変化は分かる。音速変化は第一音波から第ゼロ音波に変わるに従って約 0.5% 増加した。またその移り変わりの温度域で減衰が大きくなるのも見て取れる。また超流動転移点で減衰が大きくなり、転移点以下では急速に音速が第一音波の音速に戻り減衰も小さくなった。これらの振る舞いは過去の実験とよく一致する。音速変化の分解能が後に出てくる固体の実験結果よりの悪いのは常流動相における減衰が大きく超音波のエコーが数個しか見えなかったことと平均回数の違いによる。

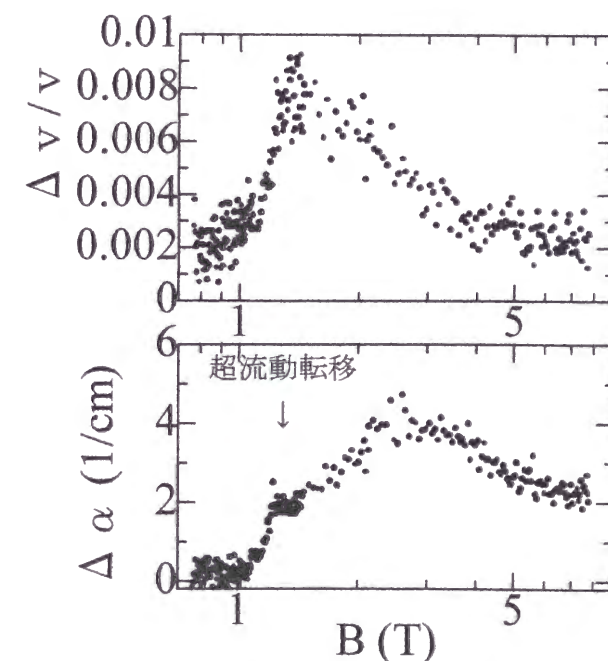


図 3 消磁中の液体  $^3\text{He}$  の音速と減衰の変化

### 3. 2 サンプルセル類概観

図4がサンプルセル、ポメラランチュックセル、NMR マグネットの全体図である。図には示していないが、上部は熱絶縁体の TI ポリマーで希釈冷凍機の混合室に固定されており、下部はアニールした高純度銅で核断熱消磁ステージに固定されている。

ポメラランチュックセルとは  $^3\text{He}$  の資料室と  $^4\text{He}$  の資料室が断面積の違うベローでつながれており、比較的低压 (10 から 20 気圧) の  $^4\text{He}$  で高压 (約 34 気圧) の  $^3\text{He}$  の資料室の体積を変化させる装置である。 $^3\text{He}$  の融解圧は 300mK 付近で極小が存在する。したがって室温から  $^3\text{He}$  を直接加圧しても途中の温度で固体が出来てしまい実験を行う 1mK 以下の  $^3\text{He}$  の資料室部分は融解圧まで加圧できない。このためポメラランチュックセルは我々の実験にとって本質的に重要である。 $^4\text{He}$  の圧力は混合室に設けた圧力計で測定した。希釈冷凍機のトップフランジ (4K) に固定したセルのヒーターにフィードバックをかけて圧力を制御した。ポメラランチュックセルは磁場中でも比熱を小さく押さえるために銀で作成した。液体  $^3\text{He}$  の冷却は焼結銀の熱交換器 (約  $100\text{m}^2$ ) を通して行った。ただしシールとして超伝導体の In を用いたため NMR の磁場を高磁場まで上げられず、磁場依存性の測定等には障害となった。

サンプルセルはNMRを行っても渦電流による発熱の恐れのないスタイキャスト1266で作った。上部には圧力計を設けた。固体作成、固体成長などはこの圧力計をモニターしながら行い、常磁性相では融解圧温度計として用いた。下部に超音波測定部があるが詳しくはサンプル作成のところで述べる。

NMR マグネットは TI ポリマーでポメラランチュックセルに固定されており、熱的には混合室にアンカーされている。NMR マグネットは横向きであって、超音波の伝播方向と磁場は平行である。したがって U2D2 相の NMR 共鳴周波数シフトから結晶軸の方向が決定できた<sup>3</sup>。

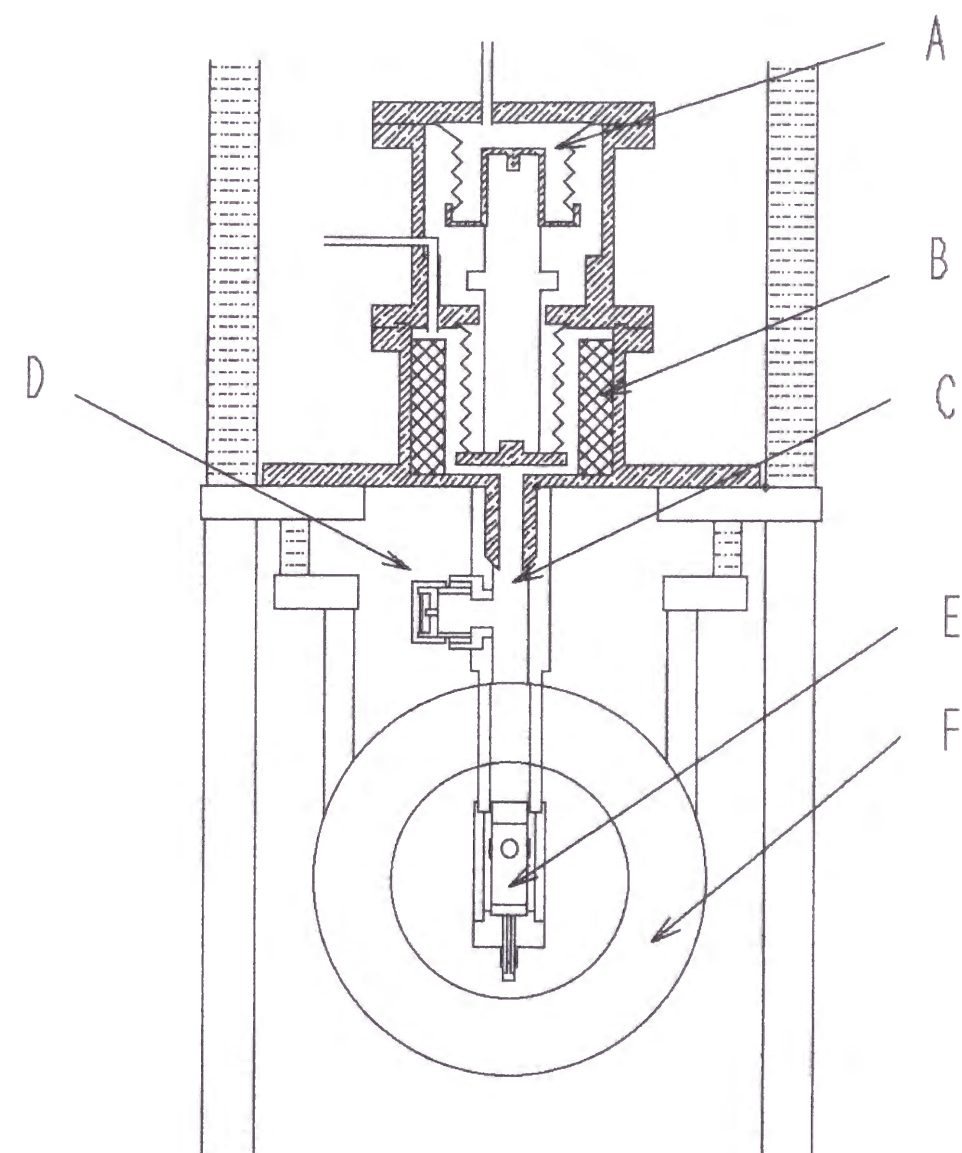


図4 サンプルセル全体図

A : ポメラランチュックセル加圧用液体  $^4\text{He}$

B : 焼結銀熱交換機

C :  $^3\text{He}$  試料室

D : 圧力計

E : 超音波測定部

F : NMR 静磁場用超伝導マグネット



### 3. 3 サンプル作成

図5が超音波測定部の模式図である。固体の作成方法を説明する。試料室を液体 $^3\text{He}$ で満たし、これを銅の核断熱消磁によって約 0.5mK まで冷却する。このとき液体は超流動 B 相になっている。次に  $^4\text{He}$  のヒーターのパワーをゆっくりと上げてゆき、 $^3\text{He}$  の試料室の体積を縮めて液体 $^3\text{He}$  を融解圧の数 mbar 上の過加圧状態まで圧縮する。液体は準安定状態で十分に長時間存在できる。試料室の底から生やした内径 1mm 高さ 13mm の円筒の底に用意した種結晶生成用のヒーター (A) に 1 erg 程の熱パルスを入れると、そこに固体が生成する。このとき  $^3\text{He}$  の圧力は融解圧に落ち、NMR には巨大な固体  $^3\text{He}$  の吸収が見える。種結晶は細長い円筒の底という試料冷却の意味では不利な位置にあるためか、完全には転移点以下に冷却できず常磁性相のままであった。この種結晶はまだ多結晶である可能性があるので、NMR の吸収をモニターしながらできるだけ小さく結晶を溶かした。その後、試料室を圧縮し固体を成長させた。上部の 2 つの超音波発振子 (B) とスペーサー (C) に挟まれた空間まで固体を成長させ音速の測定を行った。超音波発振子は効率のよい  $\text{LiNbO}_3$  を用いた。 $\text{LiNbO}_3$  は Z-Cut であり、音波は縦波である。(D) はアルミの電極であってその直径は 3mm である。また超音波の周波数は第三高調波の  $f = 10.98\text{MHz}$  で測定した。スペーサーはマコールで作成した。その幅は 3.1mm である。スペーサーの横には窓 (E) が開いておりテトロン 420 のメッシュが貼ってある。この窓によって超音波がスペーサーを直接伝わる経路を絶った。このメッシュは約  $20\mu\text{m}$  の穴が空いているが、固体が外にこぼれることはなかった。熱的にはメッシュを通して固体と超流動 $^3\text{He}$  が接触している。超低温の感覚では巨大な結晶であるが効率よく冷却でき、上まで成長してきた固体は必ず U2D2 相となっていた。(F) は NMR のピックアップコイルで下のコイルは先に述べた種結晶モニター用であり、上のコイルは超音波の伝播部分のモニター用である。

ここで細長い円筒の中で結晶を成長させる理由を説明しよう。U2D2 相は (100) を異方軸とすることは既に述べた。しかし(010)、(001)の等価な方向があるため、単結晶中に常に 3 個の磁区が存在することが NMR イメージングの実験で分かっている。3 個と書いた意味は 3 種類の細かな磁区が単結晶中に無数に存在するのではなく、常にそれぞれが 1 個ずつ大きな固まりとして単結晶中に合計 3 個存在するという意味である。したがって十分に長い円筒容器の底から種結晶を成長させれば 2 個の磁区は壁にぶつかり、上部までは 1 個の磁区のみが成長してくるという仕掛けである<sup>14,29,30</sup>。この方法はこれまで我々の研究室で行ってきたパルス NMR の実験の試料作成方法を踏襲したものである。超音波で異方軸に対する異方性等を調べるためには、このようにして単磁区サンプルで測定することが重要である。パルス NMR の実験では鉛直方向に NMR 主磁場が向いており、上部まで成長してくる磁区は主磁場（即ち成長方向）と異方軸の方向が一番離れているものが常に成長してきた。このため異方軸に対する角度依存性が限られた範囲でしか測定できなかった。この超音波測定セルでは成長方向と超音

波の伝播方向が直角であるため上のような問題はなかった。なぜいつもこのような磁区が存在するのか、あるいはなぜ成長方向と異方軸の角度に相関があるのかという問題は未解決であって興味深い<sup>15,29</sup>。結晶成長速度の測定結果については後に一節を設けて説明する。

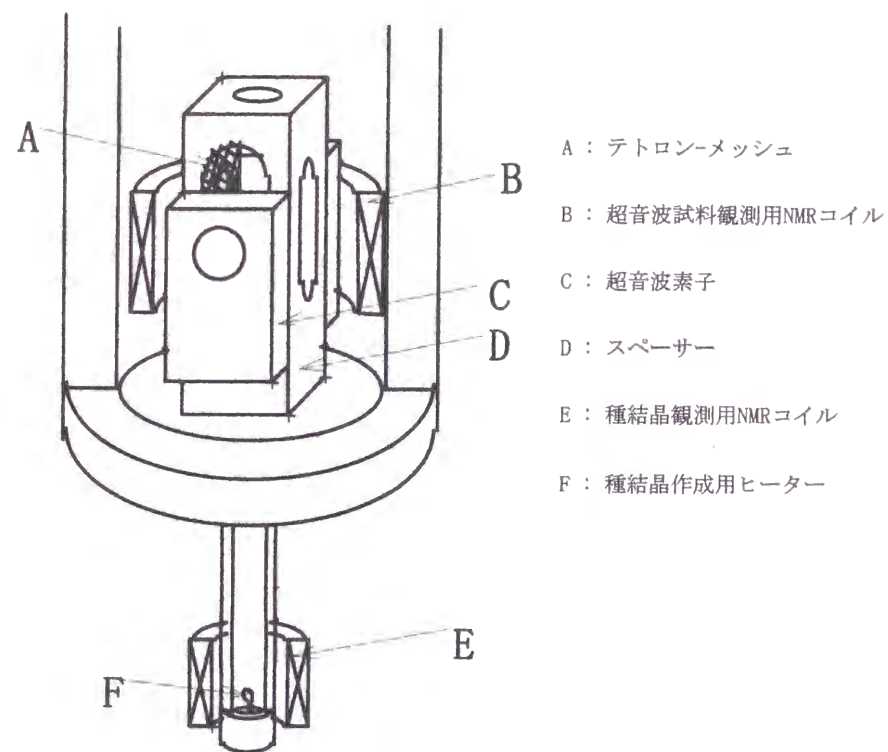


図5 試料室の超音波測定部

固体の成長は超音波のエコーをモニターしながら行った。図6の左列が固体成長中の超音波エコーの変化であって、右列の漫画がそのときの固体の位置の予想図である。固体がまだ電極の位置に到達していないときは超流動  $^3\text{He-B}$  の信号が見える（一番上の図）。エコーの往復時間から求めた音速の絶対値は  $421\text{m/sec}$  で過去の実験と一致した。やがて固体が電極の位置にくると一旦信号が消え（真中の図）、さらに成長させると徐々に固体の信号が現れた（一番下の図）。エコーの間隔が短くなっていることから固体を通ってきた超音波信号であると分かる。固体の成長はエコーの振幅が一定になったところで止めた。固体の減衰は超流動のそれと比べて遜色なく、非常に小さいことが分かる。この減衰は装置の側で決まっており約  $0.2 (1/\text{cm})$  であった。固有の減衰はそれよりも小さいと思われる。この周波数では多重マグノン緩和による減衰は測定できなかった。

半径が  $a$  の発振子から発せられた波長  $\lambda$  の波の回折による減衰はおおよそ

$$\alpha \approx \frac{\lambda}{a^2} = \frac{v}{fa^2} \quad (3.3.1)$$

と見積もられる<sup>11)</sup>。  $a = 1.5 (\text{mm})$ ,  $f = 10 (\text{MHz})$ ,  $v = 500 (\text{m/sec})$  を代入すると、 $\alpha \approx 0.2 (1/\text{cm})$  が得られ、測定結果と矛盾しない。

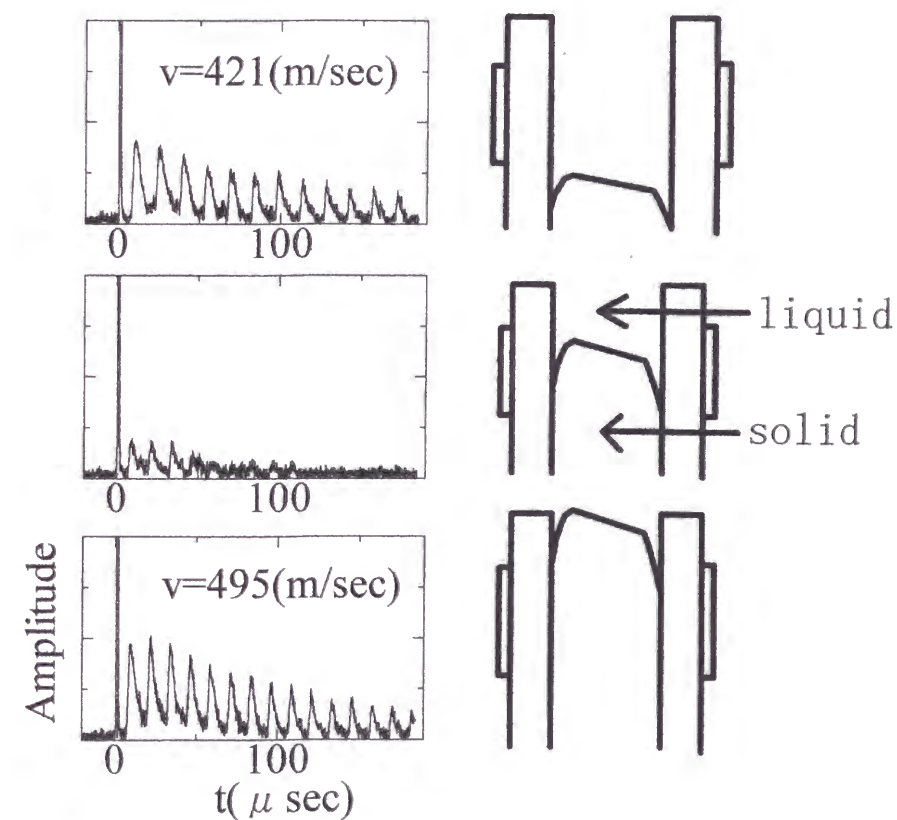


図6 固体成長中の超音波信号の変化（左列）とその時の固体の位置の予想図（右列）

### 3. 4 超音波測定

超音波測定はパルス透過法で行った。前述の2枚の発振子のうち一方を送信、もう一方を受信に用いた。パルス幅は1 $\mu$ secである。測定にはヘテロダイン法を用い、中間周波数は40MHzとした。超音波エコーをPSD検波した後、0度、90度成分をそれぞれデジタイザーに取り込んだ。そこからエコーの振幅、位相をコンピューターで求めた。超音波パルスは発熱を抑えるために数分に一発の割合で送った。図7に測定器のダイアグラムを示す<sup>31</sup>。

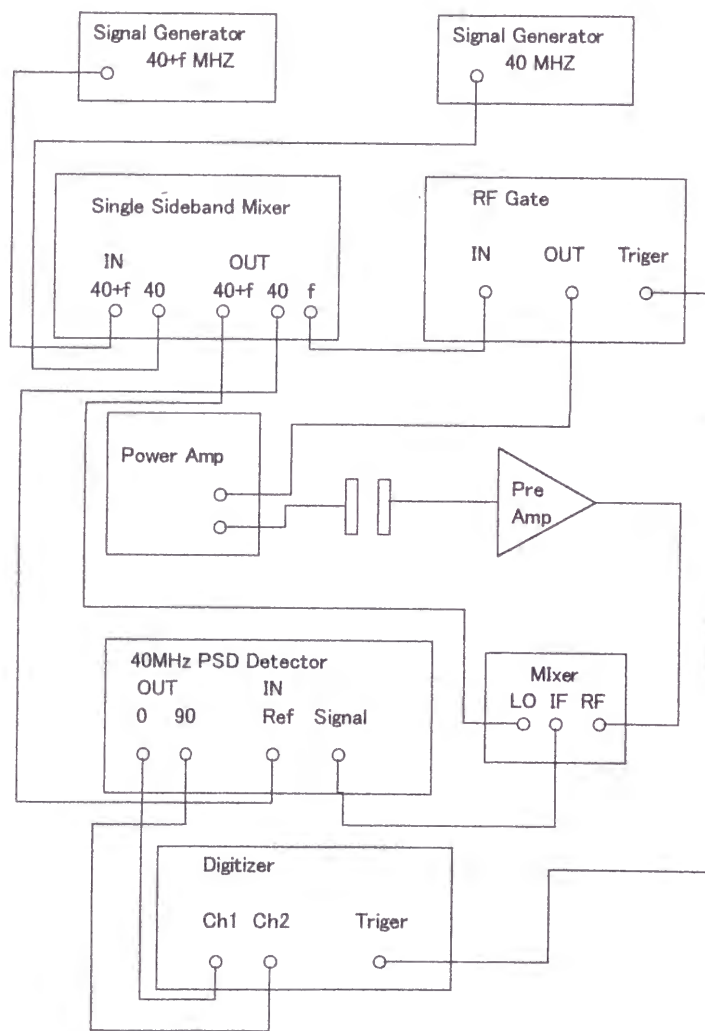


図7 超音波測定器のダイアグラム

図8は得られたエコー列の振幅と位相の例である。 $n$ 番目のエコーの位相 $\varphi$ は音速の絶対値を $v$ 、スペーサー間隔を $d$ とすると、

$$\varphi = \frac{2\pi f(2n-1)d}{v} \quad (3.4.1)$$

と書ける。これから音速変化は位相変化を測定することにより

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{\Delta \varphi}{\varphi} \quad (3.4.2)$$

と求められる。この方法では一つのエコーのみに着目して他の情報は利用しないことになる。そこで今回は次のような方法を採用した。超音波が発振子間を一往復する間に進む位相は

$$\beta = \frac{4\pi f d}{v} \quad (3.4.3)$$

と書ける。実験で得られた各エコーの位相は $-180^\circ$ から $180^\circ$ で表されているが、一定の規則に従って各エコーの位相に $360^\circ$ の整数倍を足してやると全てのエコーの位相がほぼ一直線に並ぶ。各エコーの最低温度からの変化分を最小二乗法で直線にフィットし、この直線の傾きの変化が $\beta$ の変化に等しいことから

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{\Delta \beta}{\beta} \quad (3.4.4)$$

より音速変化を求めた。音速の絶対値は前述のようにエコーの往復時間から求めた。その精度は約1%であった。

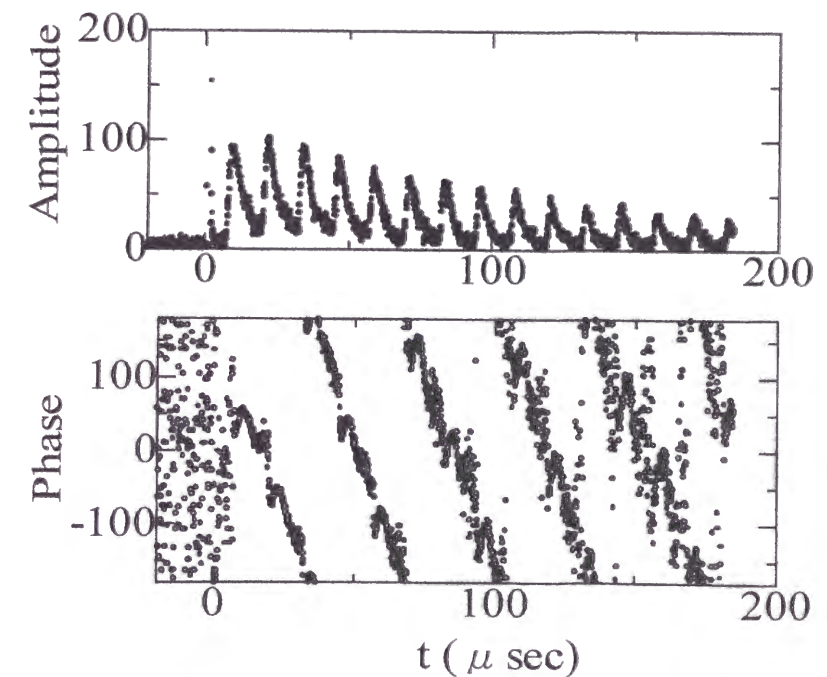


図8 観測された超音波エコー列の振幅と位相の例  
パルスは $t=0$ で送っている



### 3. 5 NMR 測定

NMR は種結晶のモニターや U2D2 相での温度測定に使用し、全て CW で行った。モニターは測定時間が短くてすむ周波数掃引で行った。U2D2 相では大きく周波数シフトするため、温度測定はチューンの変更の必要がない磁場掃引で行った。図 9 に周波数掃引のブロックダイアグラムを示す。NMR の主磁場は先に述べたように横向きであり、超音波伝播方向と平行である。このメインマグネットはヘルムホルツ型の超伝導マグネットで 1.015kG/A の磁場を発生する。<sup>3</sup>He の線幅は 920kHz の周波数で約 10kHz であった。このほかに独立に電流の流せる補助マグネットもあるが今回は使用しなかった。

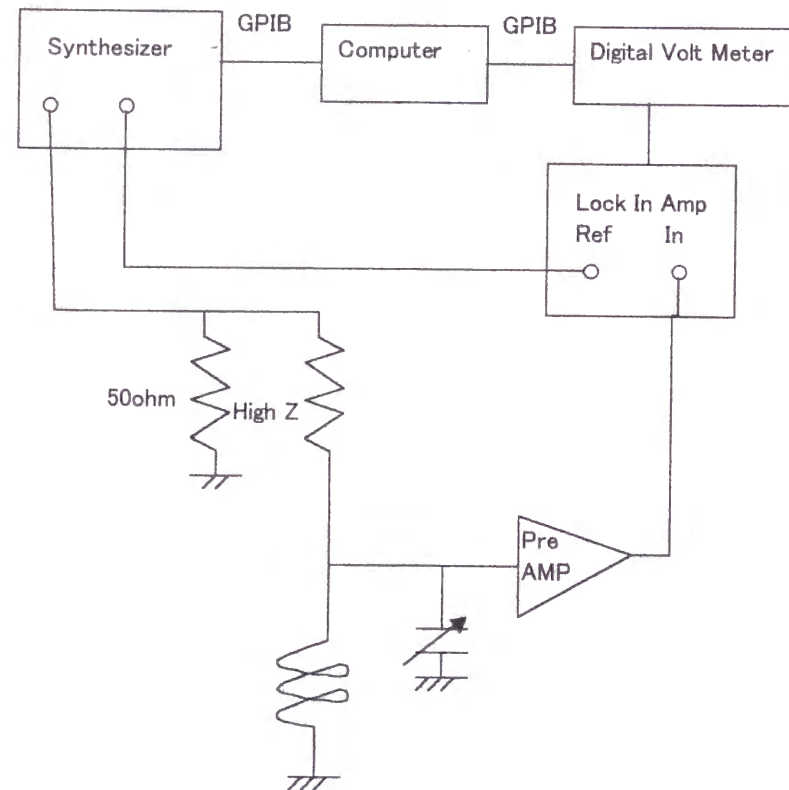


図 9 CWNMR のダイアグラム

### 3. 6 温度測定

D.D.Osheroff, M.C.Cross, D.S.Fisher は、U2D2 相におけるスピンの運動方程式を次のように書いた<sup>3</sup>。

$$\dot{\vec{S}} = \gamma \vec{S} \times \vec{H} - \lambda (\hat{d} \cdot \hat{i}) (\hat{d} \times \hat{i}) \quad (3.6.1)$$

$$\dot{\hat{d}} = \gamma \hat{d} \times \left( \vec{H} - \frac{\gamma \vec{S}}{\chi} \right) \quad (3.6.2)$$

ここで  $H$  は外部磁場、 $S$  は核磁化、 $\hat{d}$  は規格化された副格子磁化、 $\hat{i}$  は異方軸の方向を示す単位ベクトルである。また、 $\gamma$  は<sup>3</sup>He の磁気回転比、 $\chi$  は横帯磁率、 $\lambda$  は双極子相互作用を表すパラメータで異方性エネルギーを  $\frac{1}{2} \lambda (\hat{d} \cdot \hat{i})^2$  と書いたことに対応する。

この OCF 方程式の  $\gamma \vec{S} = \chi \vec{H}$ ,  $\vec{H} \perp \hat{d}$ ,  $\hat{d} \perp \hat{i}$  を満たす平衡状態の周りの微小振動の振動数は

$$\omega^2 = \frac{1}{2} \left\{ \omega_L^2 + \Omega_0^2 \pm \left[ (\omega_L^2 - \Omega_0^2)^2 + 4\omega_L^2 \Omega_0^2 \cos^2 \theta \right]^{1/2} \right\} \quad (3.6.3)$$

と書ける。ここで  $\omega_L = \gamma H$  はラーモア周波数、 $\Omega_0^2 = \gamma^2 \lambda / \chi$  はゼロ磁場での共鳴周波数、 $\theta$  は外部磁場と異方軸のなす角である。この式のプラス符号は NMR のいわゆるアップモードで今回はこれから温度を求めた。

前述のように NMR は磁場スイープを行い共鳴周波数は 900kHz とした。U2D2 相で 3 つのドメインからの共鳴が見えるときは、それぞれのラーモア周波数を  $\omega_{L1}, \omega_{L2}, \omega_{L3}$  とし、磁場と異方軸の角度を  $\theta_1, \theta_2, \theta_3$  とすると、

$$\sum_{n=1}^3 \cos^2 \theta_n = 1 \quad (3.6.4)$$

関係がある。これから

$$\left( \frac{\Omega_0}{2\pi} \right)^2 = \omega^2 \frac{\omega^2 \sum_{n=1}^3 \frac{1}{\omega_{Ln}^2} - 3}{\omega^2 \sum_{n=1}^3 \frac{1}{\omega_{Ln}^2} - 2} \quad (3.6.5)$$

と求まり、 $\Omega_0$  の温度依存性は測定されているのでそこから温度が分かる。

一つのドメインからの共鳴しか見えないときは、温度  $T_N$  での共鳴周波数からその  $\cos^2 \theta$  が分かり、それを用いて



$$\left(\frac{\Omega_0}{2\pi}\right)^2 = \omega^2 \frac{\omega^2 - \omega_L^2}{\omega^2 - \omega_L^2(1 - \cos^2 \theta)} \quad (3.6.6)$$

から、それまでの温度が決定できる。

常磁性相においてはサンプルセルの圧力計で測定した融解圧から温度を求めた。圧力計は Be-Cu 製で、圧力変化によってダイヤフラムがたわみ、コンデンサーの容量が変化する標準的なものである。基準コンデンサーを核断熱消磁ステージに固定した。圧力計、基準コンデンサー、レシオトランスでブリッジを構成し、圧力を求めた。圧力計の較正は 1K で行った。

### 3. 7 結晶成長および融解速度

良質の単結晶単磁区サンプルで超音波測定を行うことの重要性は既に述べた。最終的に細長い円筒の底から種結晶を成長させれば上部には単磁区のサンプルが成長してくると分かり、今回のサンプルセルのデザインになった。この単磁区サンプル作成方法の開発段階で細長い円筒中での核整列固体の結晶成長および融解速度の測定を行ったので、この一節で説明したい<sup>30</sup>。

実験を行った温度域では固体は核整列相であり、液体は超流動 B 相である。したがって固体液体間のエントロピー差は小さく、結晶成長に伴う潜熱は無視できる。また液体は超流動であることから摩擦無く物質の輸送が可能である。熱輸送、物質輸送が無視できる状況での結晶成長は界面での過程が律速になっており、どのような機構で成長速度、融解速度が決まっているか興味深い。<sup>4</sup>He を用いた実験ではこの条件が比較的高温の 1K 以下で実現でき、これまでに良く調べられている<sup>32</sup>。<sup>3</sup>He を用いた超低温の実験は我々が始めて行った。成長速度は螺旋転位によって出来たステップの速度が超流動対破壊臨界速度に等しいとして説明できた。また融解速度は成長速度より一桁以上速いことから、融解中は界面がラフになっていることを示唆した。最近、ライデン大学やヘルシンキ工科大学は超低温で光学的に結晶を可視化することに成功し、我々の得た実験結果と矛盾しない観測をしている<sup>33,34</sup>。3. 7. 1 で実験方法を説明し、3. 7. 2 で実験結果、3. 7. 3 で考察を述べる。

#### 3. 7. 1 実験方法

まずサンプル作成の節で説明した手順に従って核整列した種結晶を円筒セルの底に用意する。次に <sup>4</sup>He の圧力をすばやく上げてやる (図 10 の A 点から B 点)。これに伴って <sup>3</sup>He の圧力が融解圧から数 mbar 上昇し、固体が円筒の中で成長するに従ってゆっくり融解圧に戻ってくる。この間 <sup>4</sup>He の圧力は一定に保たれている。結晶の融解は円筒の上部まで結晶を成長させた後、<sup>4</sup>He の圧力を急速に下げてやることによって調べた (図 10 の C 点)。

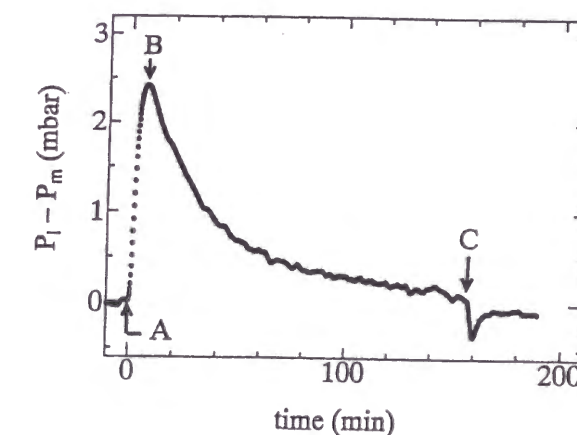


図 10 測定中の液体の圧力の時間変化

結晶成長の駆動力である液体と固体の化学ポテンシャル差は単位体積あたり

$$\Delta\mu = \frac{\rho_s - \rho_l}{\rho_s} \times (P_l - P_m) \quad (3.7.1)$$

で与えられる。ただし  $P_l$  は各時刻の液体の圧力で、 $P_m$  は融解圧である。また界面の高さが変化することによる圧力変化は無視している。

界面の移動速度は

$$v = \frac{\rho_l}{\rho_s - \rho_l} \left( VK + \frac{S_3^2}{k} \right) \frac{\dot{P}_l}{s} = A \dot{P}_l \quad (3.7.2)$$

で与えられる。 $V$  は  $^3\text{He}$  の体積であり、 $K$  は  $^3\text{He}$  の圧縮率、 $S_3$  はポメラチュックセルのベローの  $^3\text{He}$  側断面積、 $s$  は円筒の断面積、 $k$  はベローのばね定数で 1 K の圧力較正から求めた。 $A$  の値は約 3.0 mm/mbar であった。

### 3. 7. 2 実験結果

図 1 1 は温度  $0.78T_N$  における成長速度と融解速度の  $\Delta\mu$  依存性である。融解速度は成長速度に比べて著しく速かった。また融解速度は低温ほど速く大きな温度依存性を示した。実際低温では融解速度は速すぎて、この測定方法では測定出来なかった。

図 1 2 は成長速度の温度依存性である。融解速度と異なりその温度依存性は小さかった。

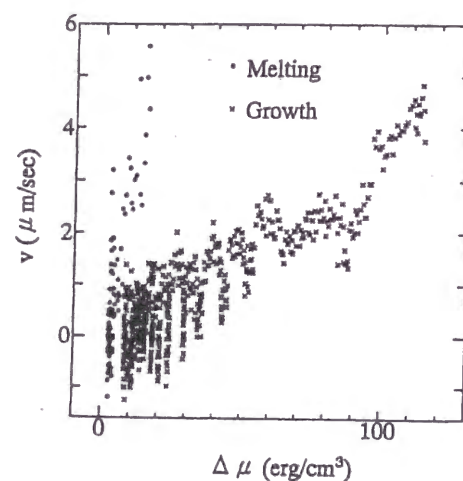


図 1 1  $0.78T_N$  における成長速度と融解速度

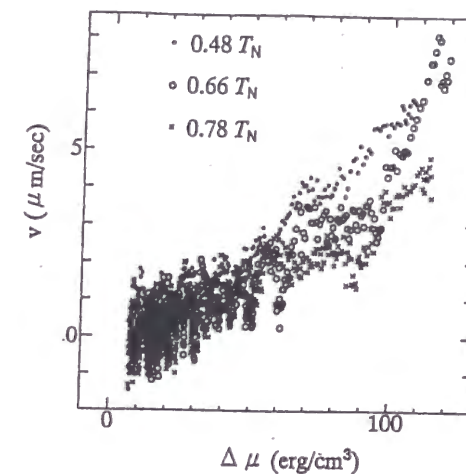


図 1 2 成長速度の温度依存性

### 3. 7. 3 考察

成長速度と融解速度が著しく異なることから、成長速度は熱輸送などが律速になっていないことが分かる。実験を行った温度域は(110)面のラフニング温度の 80mK より十分低温である<sup>35</sup>。結晶の成長形では最も成長速度の遅い面が現れるので、測定した成長速度はファセットな面の移動速度と考えられる。一方融解中は易動度の大きい界面が現れるので、融解速度はラフな面の移動速度を測定したことに対応する。

ファセットな面の成長様式として 2 次元核生成による成長と螺旋転位による成長の二つが考えられる。核生成は普通ラフニング転位より十分低温では起こり得ないので、螺旋転位による成長として考える。このとき成長速度は<sup>36</sup>

$$v \approx v_s \frac{a^2 \Delta\mu}{4\pi\beta} \quad (3.7.3)$$

ここで  $v_s$  はステップの速度、 $a$  は格子定数、 $\beta$  はステップエネルギーである。普通  $v_s$  はステップの易動度を  $\eta$  として  $v_s = \eta\Delta\mu$  と表される。超低温で  $\eta$  は、ステップと液体中の素励起との散乱で決まると考えられる。フォノンやスピン波との散乱では  $\eta \propto T^3$ 、

超流動の準粒子との散乱では  $\eta \propto \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right)$  の温度依存性を示すが、いずれも成長速

度の小さな温度依存性を説明できない。そこでこのような超低温では  $\eta$  は十分大きく、有限の  $\Delta\mu$  があれば  $v_s$  が他の臨界速度で押さえられてしまうと考える<sup>36</sup>。  $\beta$  の正確な値

は知られていないが  $^4\text{He}$  との比較から  $\beta \approx 1 \times 10^{-10} (\text{erg/cm})$  を採用する。臨界速度として超流動の対破壊臨界速度を用い、 $v_s \approx v_c \approx 10 (\text{cm/sec})$  とする。 $\Delta\mu = 100 (\text{erg/cm}^3)$  のとき成長速度は  $v \approx 7 (\mu \text{ m/sec})$  となり、実験結果と近い値を与える。またその小さい温度依存性も説明できた。 $\beta$  や臨界速度は大雑把な値であるが、このような機構が成長速度を決めていることは確かだと思われる。

#### 4 実験結果、解析

図 1 3 が典型的な音速の温度変化である。サンプル番号は E である。低温側から温度変化の様子を見ていこう。U2D2 相では  $T^4$  に比例して音速は増加した。 $T_N$  では約 0.1% の音速の飛びが見られた。 $T_N$  よりわずかに高温側で飛んでいる様に見えるのは、この一次相転移の非常に長い緩和時間のためである。このサンプルでは 1mK から 2mK までおよそ 8 日かけてゆっくり昇温した。常磁性固体の低温側で音速はわずかに増加し、3mK 付近の極大を通過して高温側で大きく減少した。

以下で各温度域における音速変化を解析する。ただし 4. 1 は音速の絶対値の方向依存性であり、この精度では核スピン系の寄与は測定にはかからない。過去の実験と比較することによって、音速の絶対値と NMR によって決めた結晶の方位が正しいことをチェックするのが目的である。4. 2 で U2D2 相の音速変化、4. 3 で相転移点での音速の飛び、4. 4 で常磁性相での音速変化について議論する。

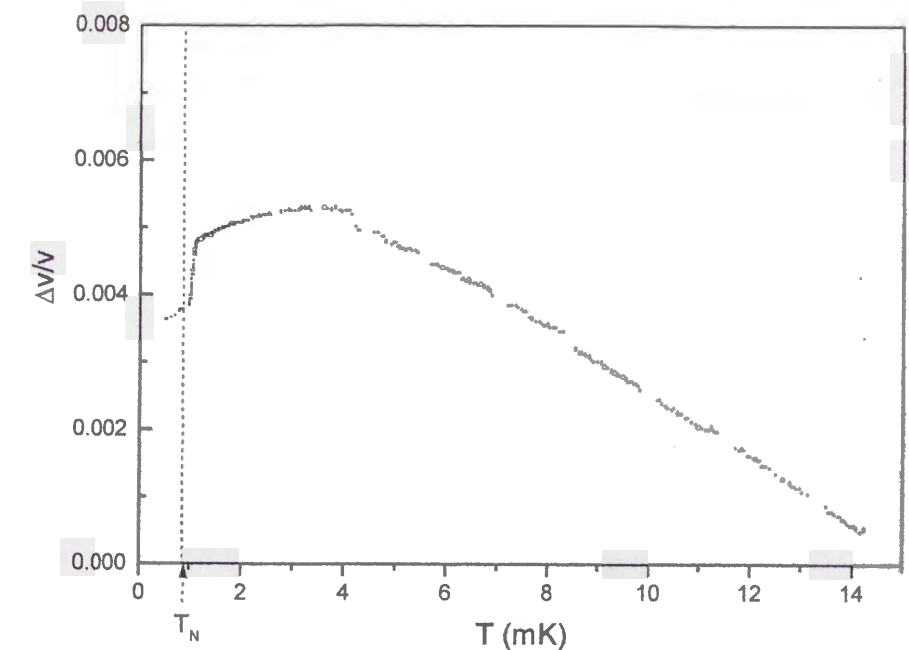


図 1 3 サンプル E における音速の温度依存性



#### 4. 1 音速の絶対値の方向依存性

図 1 4 に音速の絶対値の方向依存性をステレオグラフィック投影図に示す。絶対値の精度は 1% である。結晶軸の方向は U2D2 相の NMR の周波数シフトから求めた。

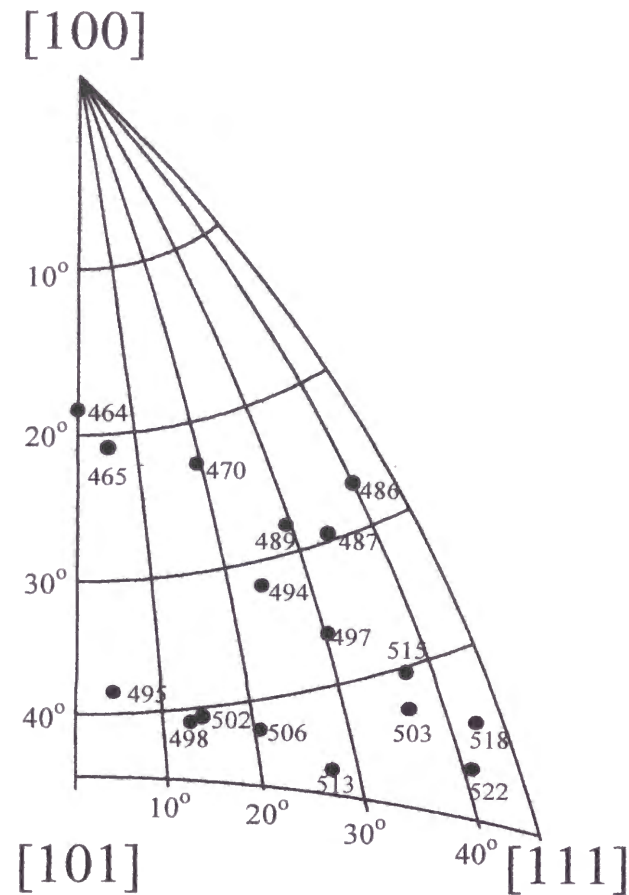


図 1 4 音速の絶対値の方向依存性  
各丸印が結晶軸に対する音波の方向を表し、添えられている数字が音速で単位は m/sec である

D.S.Greywall はモル体積  $21.6 \text{ cm}^3/\text{mole}$  の bcc 固体  $^3\text{He}$  の弾性定数を測定し、 $10^9 \text{ cm}^2/\text{sec}^2$  を単位として、

$$\begin{aligned} C_{11}/\rho &= 2.71 \pm 0.01 \\ C_{12}/\rho &= 2.59 \pm 0.06 \\ C_{44}/\rho &= 1.42 \pm 0.01 \end{aligned} \quad (4.1.1)$$

を得た<sup>5</sup>。これらを我々の実験した融解圧上でのモル体積  $24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$  に式(2.3.5)を用

いて変換すると

$$\begin{aligned} C_{11} &= 0.220 \\ C_{12} &= 0.210 \\ C_{44} &= 0.115 \end{aligned} \quad (4.1.2)$$

となる。ただし  $\gamma_L$  として比熱測定から得られている  $\gamma_L = 2.2$  を用いた。

(2.7.17)にしたがって、これらの弾性定数から計算される各方位への音速と、我々の測定から得られた音速の絶対値を比較したのが次の図 1 5 である。

図中の直線は  $v_{cal} = 1.01688 \times v_{data}$  である。逆にこの係数を 1 として、 $\gamma_L$  の値を求めると  $\gamma_L = 2.35$  になった。これから得られる弾性定数は、 $10^9 \text{ cm}^2/\text{sec}^2$  を単位とし

$$\begin{aligned} C_{11} &= 0.212 \\ C_{12} &= 0.203 \\ C_{44} &= 0.111 \end{aligned} \quad (4.1.3)$$

となる。我々の値が 3% 程小さいが、一致は良好である。

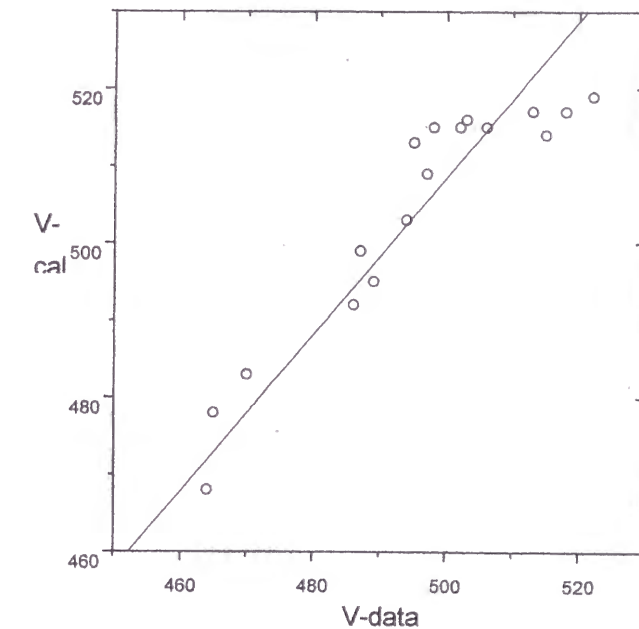


図 1 5 弾性定数から計算した音速と測定結果の比較



固体の成長は超音波のエコーをモニターしながら行った。図6の左列が固体成長中の超音波エコーの変化であって、右列の漫画がそのときの固体の位置の予想図である。固体がまだ電極の位置に到達していないときは超流動  $^3\text{He-B}$  の信号が見える（一番上の図）。エコーの往復時間から求めた音速の絶対値は 421m/sec で過去の実験と一致した。やがて固体が電極の位置にくると一旦信号が消え（真中の図）、さらに成長させると徐々に固体の信号が現れた（一番下の図）。エコーの間隔が短くなっていることから固体を通ってきた超音波信号であると分かる。固体の成長はエコーの振幅が一定になったところで止めた。固体の減衰は超流動のそれと比べて遜色なく、非常に小さいことが分かる。この減衰は装置の側で決まっており約 0.2 (1/cm)であった。固有の減衰はそれよりも小さいと思われる。この周波数では多重マグノン緩和による減衰は測定できなかった。

半径が  $a$  の発振子から発せられた波長  $\lambda$  の波の回折による減衰はおよそ

$$\alpha \approx \frac{\lambda}{a^2} = \frac{v}{fa^2} \quad (3.3.1)$$

と見積もられる<sup>11)</sup>。  $a = 1.5$  (mm),  $f = 10$  (MHz),  $v = 500$  (m/sec) を代入すると、  $\alpha \approx 0.2$  (1/cm) が得られ、測定結果と矛盾しない。

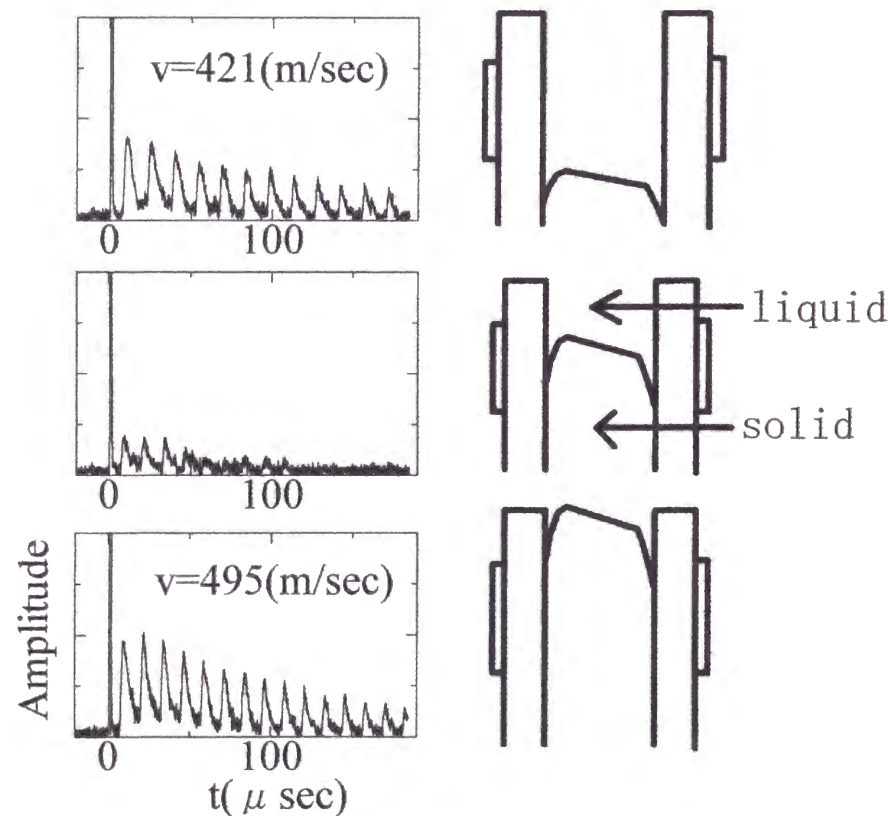


図6 固体成長中の超音波信号の変化（左列）とその時の固体の位置の予想図（右列）

#### 4. 2 U2D2 相での音速の温度依存性

$T_N$  以下の温度域では  $\Delta v/v$  は、内部エネルギーの変化による項とモル体積の変化による項ともに  $T^4$  に比例する。内部エネルギーによる項は、式(2.2.12)で書けるが、解析では  $k$  をパラメーターとして、

$$\frac{\Delta v(T)}{v} = k \times \frac{\gamma(\gamma+1)}{2v^2 \rho V} \Delta U(T) \quad (4.2.1)$$

でフィットする。ただし  $\gamma = -18$ ,  $\rho = 3 \times 10^{-3}$  (kg/mole),  $V = 24.2 \times 10^{-6}$  (m<sup>3</sup>/mole) である。また  $T$  の単位を mK とすると、内部エネルギー密度の部分は

$$\frac{\Delta U(T)}{V} = \frac{\pi^2 \hbar}{15c^3} \left( \frac{k_B T}{\hbar} \right)^4 = 43.4 \times T^4 \text{ (J/m}^3\text{)} \quad (4.2.2)$$

と書ける。

モル体積の変化は式(2.4.7)より、

$$\Delta V = -4.0 \times 10^{-4} \left( \frac{T}{T_N} \right)^4 \text{ (cm}^3\text{/mole)} \quad (4.2.3)$$

ここから、式(2.3.4)のモル体積による音速変化は、

$$\frac{\Delta v(V)}{v} = -\left( \gamma_L - \frac{1}{3} \right) \frac{\Delta V}{V} = \left( 2.35 - \frac{1}{3} \right) \frac{4.0 \times 10^{-4}}{24.2} \left( \frac{T}{0.932} \right)^4 = 0.44 \times 10^{-4} T^4 \quad (4.2.4)$$

と書ける。

従って、音速の全変化(2.2.11)は

$$\frac{\Delta v}{v} = k \times \frac{\gamma(\gamma+1)\Delta U(T)}{2v^2 \rho V} - \left( \gamma_L - \frac{1}{3} \right) \frac{\Delta V}{V} \quad (4.2.5)$$

より

$$\frac{\Delta v}{v} = k \times \frac{(-18) \times (-17)}{2 \times v^2 \times 124} \times 43.4 \times T^4 + 0.44 \times 10^{-4} \times T^4 \quad (4.2.6)$$

となる。第一項目と第二項目の比はおよそ 4:1 である。

得られたデータを

$$\frac{\Delta v}{v} = a \times 10^{-4} \times T^4 \quad (4.2.7)$$

でフィットし、これから  $k$  が計算できる。図16がサンプル D の  $T_N$  以下の音速変化で、曲線が  $T^4$  でのフィットである。

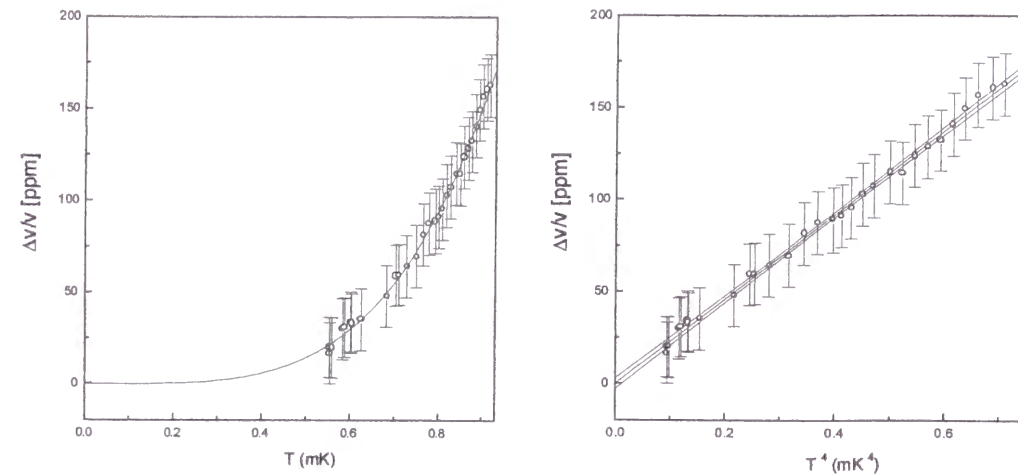


図 1 6 サンプル D における U2D2 相での音速変化  
実線は  $T^4$  のフィット

5つのサンプル A から D について上記のフィットを行い、下の表を得た。サンプルは全て単磁区であり、下線のついてい方位が異方軸の方向である。各サンプルについて結晶軸と音波の伝播方向がなす角、音速、計算で得られた音速の温度変化の内部エネルギーによる項、および全体の  $T^4$  の係数、パラメーター  $k$ 、データのフィットから得られた  $a$ 、および  $a \times v$  の値を表に示す。パラメーター  $k$  の値は 1 に近く、核スピニングによる音速変化を観測できたと思われる。

サンプル	方位	音速 $v$ (m/s)	$\frac{\Delta v(T)}{v}$ の係数	$\frac{\Delta v}{v}$ の係数	$k$	$a$ (1/mK <sup>4</sup> )	$k=1$ とした ときの $\gamma$
A	( <u>61°58'45°</u> )	518	2.00	2.44	0.70	1.84±0.23	-15.2
B	( <u>71°50'46°</u> )	513	2.03	2.47	0.86	2.19±0.22	-16.7
C	( <u>77°66'28°</u> )	489	2.24	2.68	0.63	1.86±0.24	-14.4
D	( <u>68°53'43°</u> )	514	2.03	2.47	0.91	2.29±0.15	-17.2

U2D2 相において音速が異方軸との角度に対してどのように変化する興味深い。単磁区サンプルについて、異方軸と音波の透過方向のなす角を  $\theta$  として、 $\cos^2 \theta$  の値と上記のフィットから得られた  $a$  を図 1 7 にプロットした。サンプル数は少ないが、異方性は  $\frac{\Delta v}{v}$  にして  $6 \times 10^{-5}$  以下と見積もられる。U2D2 相における音速の理論がない現状でこの値自身の評価は難しいが、異方性の検出にはさらに精度を上げる必要がある。

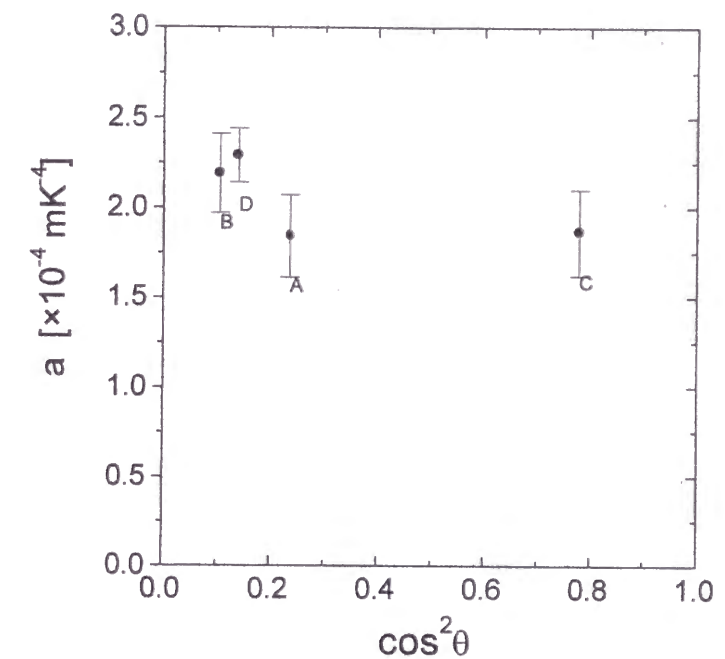


図 1 7 音速変化の  $T^4$  の係数の異方軸との  
角度依存性

#### 4. 3 相転移点での音速の飛び

一次相転移点でのエントロピーの飛びは、Osheroff and Yu<sup>24</sup>の融解圧の測定から1モル当たり  $0.49R\ln 2$ 、また Greywall and Busch<sup>25</sup>の比熱の測定から  $0.43R\ln 2$  の値が得られている。これらの値を用いて音速の飛びを求める。

前者から内部エネルギーの飛びは

$$\Delta U = T\Delta S = 2.63 \times 10^{-3} \text{ (J/mole)} \quad (4.3.1)$$

また後者から

$$\Delta U = T\Delta S = 2.31 \times 10^{-3} \text{ (J/mole)} \quad (4.3.2)$$

である。音速の飛びは式(4.2.1)で  $k=1$  とすると、サンプル E で前者が 0.053%、後者が 0.047%、サンプル F で前者が 0.054%、後者が 0.047% となる。

モル体積も  $T = T_N$  で飛び、

$$\Delta V = -0.00214 \text{ (cm}^3/\text{mole)} \quad (4.3.3)$$

である<sup>22</sup>。したがって式(2.3.4)から

$$\frac{\Delta v(V)}{v} = -\left(\gamma_L - \frac{1}{3}\right) \frac{\Delta V}{V} = \left(2.35 - \frac{1}{3}\right) \frac{0.00214}{24.2} = 0.018\% \quad (4.3.4)$$

となる。内部エネルギーによる寄与とモル体積変化による寄与の比は約3:1である。

サンプル E, F については  $T_N$  以上の温度域まで測定した。表に結晶軸と音波の透過方向とがなす角、音速、Osheroff および Greywall の測定値から計算した内部エネルギーとモル体積の寄与を合わせた音速の飛び、今回の実験で得られた音速の飛びの測定値を示す。ただし  $k=1$  とした。

サンプル	方位	音速(m/s)	$\left(\frac{\Delta v}{v}\right)_O$ (%)	$\left(\frac{\Delta v}{v}\right)_G$ (%)	$\left(\frac{\Delta v}{v}\right)$ の 測定値(%)
E	(81°51'41°)	502	0.071	0.065	0.09
F	(81°50'41°)	498	0.072	0.065	0.10

式(4.2.1)を用いて逆に実験値から  $k$  を計算すると  $k \approx 1.5$  となる。U2D2 相で得られた値より大きい、1 に近い値を得られた。  $k=1$  として Osheroff、Greywall の値を用いて  $\gamma$  を計算すると E では  $\gamma \sim 21, 22$ 、F では  $\gamma \sim 22, 24$  となった。2つのサンプルで大きな違いは見られなかった。

#### 4. 4 常磁性相での音速の温度依存性

式(2.3.4) (2.4.11)を使って、音速のモル体積変化からの寄与は、

$$\frac{\Delta v(V)}{v} = -\left(\gamma_L - \frac{1}{3}\right) \frac{\kappa}{V} \sum_{n=4}^5 [\gamma \Delta \tilde{V}(n-1) - V] A_n T^n \quad (4.4.1)$$

ここで  $V = 24.2 \text{ (cm}^3/\text{mole)}$ 、 $\gamma = 16$ 、 $\Delta \tilde{V} = 1.314 \text{ (cm}^3/\text{mole)}$   $\kappa = 5.3 \times 10^{-8} \text{ (Pa}^{-1})$

である。また  $\gamma_L = 2.35$  という値を用いる。内部エネルギーの寄与は式(2.5.4)である。

これらの寄与を合わせると式(4.2.5)になる。念のためにもう一度書くと、

$$\frac{\Delta v}{v} = k \times \frac{\gamma(\gamma+1)\Delta U(T)}{2v^2 \rho V} - \left(\gamma_L - \frac{1}{3}\right) \frac{\Delta V}{V} \quad (4.4.2)$$

である。 $k$  をパラメーターとしてサンプル F をフィットしたのが図18の曲線である。図から分かるように、全温度域でフィットすることは出来なかった。

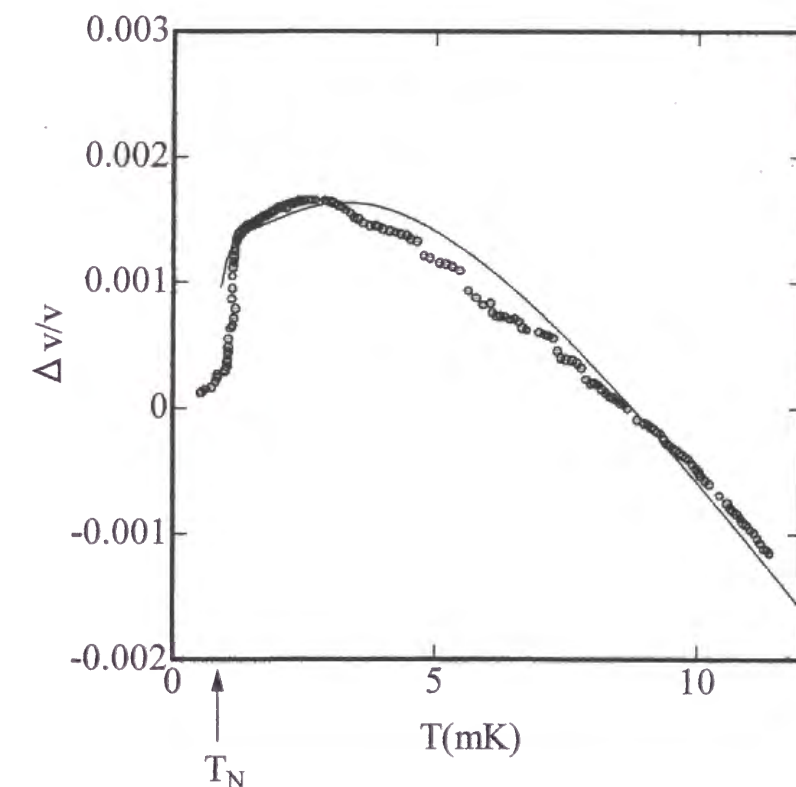


図18 サンプルFにおける音速の温度依存性  
実線は内部エネルギーとモル体積変化  
による音速変化の計算値



そこで(2.6.14)のように導いた音速の高温展開の式を用いて解析する。実験データを

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{p}{T} + \frac{q}{T^2} + \frac{r}{T^3} + s - \left( \gamma_L - \frac{1}{3} \right) \frac{\Delta V}{V} \quad (4.4.3)$$

の関数形でフィットし、 $p, q$  の値から式(2.6.12) (2.6.13) (2.6.14)を用いて $\gamma_2, \gamma_3$  の値を

計算する。ただし $\frac{d \ln \gamma_2}{d \ln V} = 0, \frac{d \ln \gamma_3}{d \ln V} = 0$ とした。

$\gamma_2, \gamma_3$  についてはおよそ $\gamma_2 \propto J^2, \gamma_3 \propto J^3$ である。 $J$  のグルナイゼン定数が $\gamma = -18$

であるとする $\frac{\gamma_2}{2} \approx -18, \frac{\gamma_3}{3} \approx -18$ 程度の値が期待される。

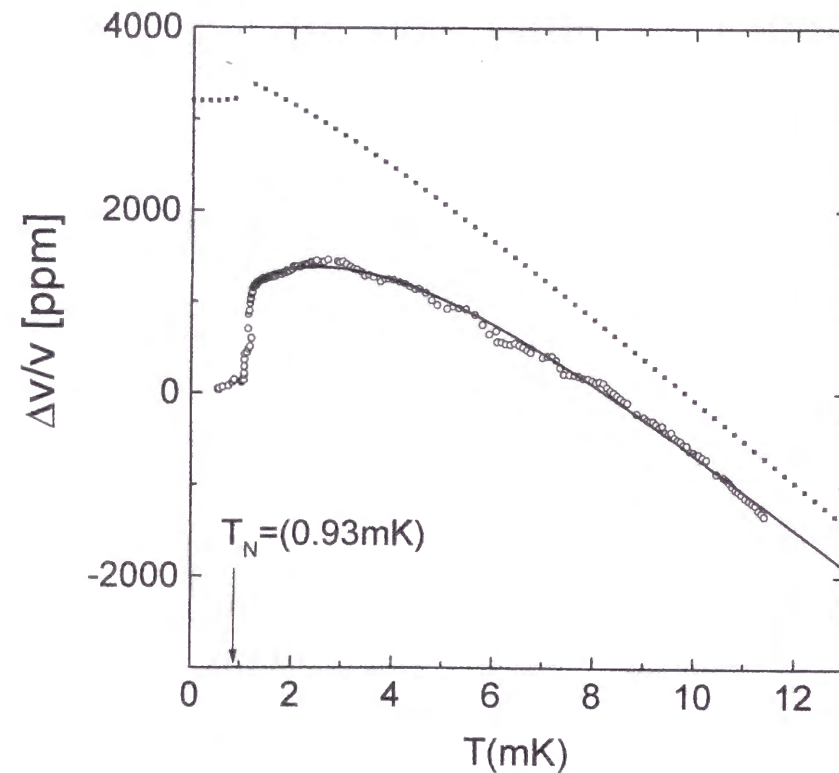


図 19 サンプル F における音速の温度依存性  
実線は高温展開によるフィットで点線は  
そのときのモル体積依存性のみの寄与

図 19 の実線がサンプル F についてのフィットである。点線はモル体積依存性の寄与のみのプロットである。実線は定数部分は省略して

$$\left( \frac{\Delta v}{v} \right)_{\text{fit}} = -\frac{0.00685}{T} + \frac{0.00893}{T^2} - \frac{0.00479}{T^3} + \frac{\Delta v(V)}{v} \quad (4.4.4)$$

である。ただし温度の単位は mK である。これから

$$\begin{cases} \frac{\gamma_2}{2} = -21.0 \\ \frac{\gamma_3}{3} = -21.9 \end{cases} \quad (4.4.5)$$

と計算できた。

サンプル E については、

$$\left( \frac{\Delta v}{v} \right)_{\text{fit}} = \frac{0.00437}{T} - \frac{0.0152}{T^2} + \frac{0.01042}{T^3} + \frac{\Delta v(V)}{v} \quad (4.4.6)$$

であり、

$$\gamma_2 = \text{imaginary} \quad (4.4.7)$$

となった。

サンプル E については $\gamma_2$  は虚数になってしまった。サンプル F についてはどちらも妥当な値が得られた。常磁性相の 3mK 以下の温度域での音速変化はモル体積依存性(図 19 の点線)だけでは説明できないことは明らかなので、核スピンの交換相互作用の寄与を観測しているのは間違いない。

ここで過去に 12mK まで固体  $^3\text{He}$  の音速を測定し、核スピンの寄与を観測した Goodkind 等<sup>17)</sup>の結果と比較する。彼等は音速の変化を

$$\frac{\Delta v}{v} = -\frac{p}{T} \quad (4.4.8)$$

でフィットしている。つまり高温展開の最低次の $T^{-1}$ に比例する項を捉えたことになる。彼らは $p$ の値としてサンプルによって異なるが0.004 ~ 0.007 と報告している。この値はサンプル F の $T^{-1}$ の係数 0.00685 と良く一致する。しかしサンプル E では負である。

常磁性相の音速変化の問題点について考えてみる。NMR の信号強度を同時にモニターしており、温度平衡についてはそれほど問題はないと考えている。ただ過去に行った予備的実験では温度変化に対して音速が大きなヒステリシスを示した。我々の実験は融解圧上での測定であるので常磁性相では大きくモル体積が変化する。このモル体積変化あるいは固体中の歪みの緩和時間が、融解圧温度計や NMR の信号強度に現れる温度の緩和時間より極端に長いと問題である。また固体 He では 10MHz 程度の超音波は 100mK 以下で、collision less 領域に入っており、熱力学から計算した音速変化からずれている可能性もある。



## 5 まとめ

超流動  $^3\text{He}$  中で超音波振動子とスパーサーの間に核整列固体  $^3\text{He}$  を制御して成長させることにより、単結晶単磁区サンプルの音速の温度依存性を測定することに成功した。U2D2 相の  $T^4$  に比例する温度依存性は核スピンマグノンの寄与として説明できた。超音波の減衰は小さく、0.2 (1/cm)以下であった。NMR の共鳴周波数シフトから U2D2 相の異方軸の方向を決定し、単結晶単磁区サンプルで音速の異方性を調べたが測定精度の範囲では観測できなかった。核整列温度で約 0.1%の音速の飛びを観測した。常磁性相において音速の温度変化を測定し、核スピンの交換相互作用の寄与を捉えた。また核整列固体の結晶成長速度を測定し、超低温での新しい律速機構を提唱した。

## 6 謝辞

長年にわたり辛抱強くご指導くださった水崎隆雄先生に感謝いたします。幾度もの失敗がありましたが、水崎さんの励ましのお陰でここまで来れたと思っています。鈴木孝雄先生には電極の蒸着方法など工作面でいろいろ教えていただきました。佐々木豊さんにはトラブルの時など何度も助けていただきました。福田耕治先生にはパルス NMR の実験で装置の一部を作成していただきました。ありがとうございます。

松下琢さんには旋盤の使い方から冷凍機の運転方法まで教えてもらいました。H.H. Hensley さんには超音波の測定器を作成して頂きました。感謝いたします。

核整列固体  $^3\text{He}$  の超音波測定という課題と一緒に取り組んだ、志賀仁君、内田昭嘉君、鈴木雅史君、山口真澄君、鷹岡君に感謝いたします。度重なるトラブルや何ヶ月にもわたる実験を乗り切って来れたのは皆さんのお陰です。ありがとうございます。

低温物理学研究室の先輩後輩の皆さんには本当にお世話になりました。実験や実験以外のことについて数々学びました。感謝いたします。

いつも液体ヘリウムを供給してくださる極低温研究室の西下さん、大塚さん、春日井さんに感謝いたします。ポメランチュックセル等を製作していただいた歴代の工場職員の皆さんに感謝いたします。元ガラス室の春日さんにはスパーサーの研磨技術について教えていただきました。

石黒武彦先生には超音波実験の立ち上げ段階で助言していただき、超音波発振子を分けていただきました。また石黒研究室の皆さんには精密切断機や蒸着装置を使わせて頂き感謝しています。宮地研究室の皆さんにも蒸着装置を使わせていただきました。大見哲巨先生は超音波関連の論文と一緒に読んでくださり、理論面で教えていただきました。大阪市大の畑徹先生にはサンプルの精製で大変お世話になりました。東京工業大学の奥田雄一先生には超音波発振子を分けていただきました。名古屋大学の上羽牧夫先生には結晶成長の実験で助言していただきました。

Northwestern 大学の W.P. Halperin 先生には超音波実験を始めるにあたってアドバイスをいただきました。Yoonseok Lee さん、Tom Haard さん、Guillaume Gervais さんは実験の合間にこの論文を書く機会を与えていただき、また現在行っている研究では大変世話になっており感謝いたします。

故平井章先生には私が 4 回生の時から亡くなられた修士 2 回生までご指導いただきました。超音波実験の結果をお見せすることは出来ませんでしたが先生には感謝しています。

- <sup>1</sup> 長岡洋介、超低温における固体ヘリウム、物理学最前線第3巻（共立出版）
- <sup>2</sup> D.D. Osheroff, *J. Low Temp. Phys.* **87** 297 (1992)
- <sup>3</sup> D.D. Osheroff, M.C. Cross and D.S. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 792 (1980)
- <sup>4</sup> R. Wanner and J. Framck, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 365 (1970), *Phys. Rev. Lett.* **25**, 345 (1970)
- <sup>5</sup> D. Greywall, *Phys. Rev.* **A3**, 2106 (1971)
- <sup>6</sup> R. Wanner, K. Mueller and H. Fairbank, *J. Low Temp. Phys.* **13**, 153 (1973)
- <sup>7</sup> F. Tsuruoka and Y. Hiki, *Phys. Rev.* **B20**, 2702 (1979)
- <sup>8</sup> I. Iwasa and H. Suzuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **49**, 1722 (1980)
- <sup>9</sup> J. Beamish and J. Frank, *Phys. Rev.* **B26**, 6104 (1982), *Phys. Rev.* **B28**, 1419 (1982)
- <sup>10</sup> I. Iwasa and H. Suzuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **51**, 2116 (1982)
- <sup>11</sup> G. Lengua and J. Goodkind, *J. Low Temp. Phys.* **79**, 251 (1990)
- <sup>12</sup> P. Ho, I. Bindloss and J. Goodkind, *J. Low Temp. Phys.* **109**, 409 (1997)
- <sup>13</sup> M.C. Cross and D.S. Fisher, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 881 (1985)
- <sup>14</sup> Y. Feng, P. Schiffer, J. Mihalisin and D. Osheroff, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1450 (1990)
- <sup>15</sup> Y. Sasaki, T. Matsushita, T. Mizusaki and A. Hirai, *Phys. Rev.* **B44**, 7362 (1991)
- <sup>16</sup> R.A. Guyer and P. Kumar, *J. Low Temp. Phys.* **47**, 321 (1982)
- <sup>17</sup> A. Fartash and J. Goodkind, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1389 (1986)
- <sup>18</sup> R. Nomura, A. Uchida, M. Suzuki, M. Yamaguchi, Y. Sasaki and T. Mizusaki, *J. Low Temp. Phys.* **113**, 763 (1998)
- <sup>19</sup> R. Nomura, M. Suzuki, M. Yamaguchi, Y. Sasaki and T. Mizusaki, to be published in *Physica B*
- <sup>20</sup> R. Wanner and H. Meyer, *J. Low Temp. Phys.* **11**, 715 (1973)
- <sup>21</sup> Y. Okamoto, to be published in *Physica B*
- <sup>22</sup> W. Ni, J.S. Xia, E.D. Adams and Y. Takano, *J. Low Temp. Phys.* **100**, 167 (1995)
- <sup>23</sup> W. Ni, J.S. Xia, E.D. Adams, P.S. Haskins and J.E. McKisson, *J. Low Temp. Phys.* **99**, 167 (1995)
- <sup>24</sup> D.D. Osheroff and C. Yu, *Phys. Lett.* **77A**, 458 (1980)
- <sup>25</sup> Greywall and Busch, *Phys. Rev.* **B36**, 6853 (1987)
- <sup>26</sup> Greywall, *Phys. Rev.* **B33**, 7520 (1986)
- <sup>27</sup> M. Roger, J. Hetherington and J. Delrieu, *Rev. Mod. Phys.* **55**, 1 (1983)
- <sup>28</sup> ランダウ、リフシッツ、弾性理論、東京図書
- <sup>29</sup> T. Matsushita, R. Nomura, H.H. Hensley, H. Shiga and T. Mizusaki, *J. Low Temp. Phys.* **105**, 67 (1996)
- <sup>30</sup> R. Nomura, H. Hensley, T. Matsushita and T. Mizusaki, *J. Low Temp. Phys.* **94**, 377 (1994)
- <sup>31</sup> A. Gibson, J. Owers-Bradley, I. Calder, J. Ketterson and W. Halperin, *Rev. Sci. Instrum.* **52** 1509 (1981)
- <sup>32</sup> S. Balibar, F. Gallet, F. Graner, C. Guthmann and E. Rolley, *Physica B* **169**, 209 (1991)
- <sup>33</sup> R. v. Rooijen, H. Akimoto, R. Jochemsen and G. Frossati, to be published in *Physica B*
- <sup>34</sup> H. Alles, A. Babkin, J.P.H. Harne, R. Jochemsen, A.Y. Parshin, V. Tsepelin and G. Tvalashvili, to be published in *Physica B*
- <sup>35</sup> E. Rolley, S. Balibar and F. Gallet, *Europhys. Lett.* **2**, 247 (1986)
- <sup>36</sup> M. Uwaha, *J. Low Temp. Phys.* **52**, 15 (1983)